

00362



UNIVERSIDAD NACIONAL
AUTONOMA DE MEXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

DETERMINACION DE LAS
CARACTERISTICAS DOSIMETRICAS
TERMOLUMINISCENTES DEL $KBr \cdot Eu$

T E S I S
Que para obtener el Grado de
Maestro en Ciencias (Física)
p r e s e n t a

ANA ELENA BUENFIL BURGOS

México, D. F.

NO SE
DEBE
REPRODUCIR
SIN
EL
CONSENTIMIENTO
DE
LA
AUTORIA

1991



Universidad Nacional
Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

INDICE

INTRODUCCION	1
I ANTECEDENTES	3
I 1.- Nociones de termoluminiscencia	3
I 2.- Halogenuros alcalinos con impurezas de europio	15
I 3.- Conceptos de dosimetria	20
I.3.1.- Definiciones	20
I.3.2.- Relación de Bragg-Gray	24
I.3.3.- Dosímetros	30
I.3.4.- Dosímetros termoluminiscentes (TLD)	33
I.4.- Halogenuros alcalinos con europio como dosímetros termoluminiscentes	40
II METODO EXPERIMENTAL	42
II 1.- Muestras	42
II 2.- Tratamientos térmicos	46
II 3.- Curva de brillo	49
II 4.- Sensibilidad	56
II 5.- Estado de agregación	63
II 6.- Desvanecimiento	64
II 7.- Curvas dosis-respuesta	68

III CARACTERISTICAS DOSIMETRICAS DE LOS CRISTALES

TRATADOS TERMICAMENTE	77
III 1.- Estabilidad	77
III 2.- Linealidad	79
III 3.- Limite superior útil de dosis	82
III.4.- Concentración óptima de europio	86
III.5.- Desvanecimiento	87
III.6.- Factores ambientales	88
IV CONCLUSIONES	90
BIBLIOGRAFIA	95

INTRODUCCION

Desde sus orígenes la humanidad ha convivido con las radiaciones. Siempre han existido fuentes naturales de radiación, siendo el Sol la fundamental para la vida en el planeta Tierra. Las radiaciones pueden ser benéficas o dañinas para el ser humano, dependiendo de manera muy crítica de la dosis que se recibe. Así pues, la habilidad para medir la radiación que absorbe cualquier cuerpo o material y la precisión con que se logra la medida cobran primordial importancia, tanto para protegerse de ella como para aprovecharla racionalmente.

La dosimetría de la radiación ha tenido un amplio desarrollo desde el momento en que hubo conocimiento de la existencia de la radiación. Entre los diversos métodos y sistemas empleados para medir dosis de radiación, la dosimetría termoluminiscente (TL) ha progresado aceleradamente tanto desde el punto de vista teórico (desarrollo de modelos que explican los mecanismos termoluminiscentes) como desde el experimental e incluso tecnológico (estudio y caracterización de nuevos materiales termoluminiscentes, optimización de los equipos y

métodos de lectura , técnicas para mejorar notablemente el control de calidad en la preparación de los dosímetros, etc.)

Este trabajo consiste en el estudio de un material termoluminiscente, el bromuro de potasio con impurezas de europio (KBr:Eu), y su evaluación como dosímetro TL. Las propiedades ópticas, luminiscentes y termoluminiscentes del KBr:Eu han sido estudiadas por un grupo de investigadores en México (He,1979; He,1981; Mu,1983; Ru,1986), despertando el interés por conocer si también exhibe propiedades dosimétricas termoluminiscentes consistentes con lo que se entiende por "un buen dosímetro". En caso de ser así, se pretende caracterizarlas.

Se presentan en el capítulo I algunos antecedentes al tema para introducir al lector. Posteriormente (capítulo II) se describe el método experimental utilizado en la investigación y se muestran los resultados experimentales. El capítulo III es una discusión de dichos resultados. Finalmente se encuentran las conclusiones (capítulo IV).

CAPITULO I

ANTECEDENTES

I.1 NOCIONES DE TERMOLUMINISCENCIA

Un material se considera termoluminiscente cuando, al ser excitado por algún medio (radiación, luz, etc.), puede volver a su estado original al ser calentado, acompañando la desexcitación por emisión de radiación electromagnética (luz). En general, el fenómeno de la termoluminiscencia ha sido estudiado en cristales y los modelos que se han desarrollado para explicarlo se refieren a estos materiales. Así pues, se dedicará un inciso a hablar de los cristales y otro a mencionar algunos de los intentos realizados para explicar la termoluminiscencia.

a) Cristales: Los sólidos cristalinos se caracterizan porque sus átomos constituyentes están ordenados de una manera regular, de tal suerte que forman un patrón en tres dimensiones que puede reproducirse a partir de la repetición de un patrón unitario también tridimensional. Existen libros de texto (De,1975) dedicados a estudiar las pro-

propiedades de los cristales, pero el interés de este trabajo se restringe a tratar de investigar qué ocurre con la energía que se suministra a un cristal. La Fig. (I-1) es un esquema tridimensional que representa la distribución de los átomos de los cristales de NaCl, cuyo patrón unitario es un cubo con iones de Na^+ en cada vértice y en el centro de cada cara, mientras los iones de Cl^- están colocados a la mitad de cada arista y en el centro del cubo.

En casi todos los sólidos cristalinos, los átomos se encuentran tan cercanos entre sí que sus electrones de valencia forman un sistema único de electrones, comunes a todo el cristal. Los estados de energía de los electrones de las capas exteriores de dicho sistema están perturbados por la influencia de todos los e^- vecinos, de tal manera que, aunque se cumple el principio de exclusión de Pauli, no existen niveles de energía individuales bien definidos sino muchos niveles tan próximos entre sí que pueden considerarse como un continuo de niveles de energía. Este continuo se llama banda de energía.

Las bandas de energía de un cristal corresponden a los niveles de energía en un átomo, por lo que un electrón perteneciente al cristal sólo puede estar en un estado energético que corresponda a alguna de las bandas.

En algunos sólidos, las bandas se pueden traslapar de tal manera que los electrones forman una distribución continua de energías permitidas. En otros sólidos, las bandas no se traslapan y existen

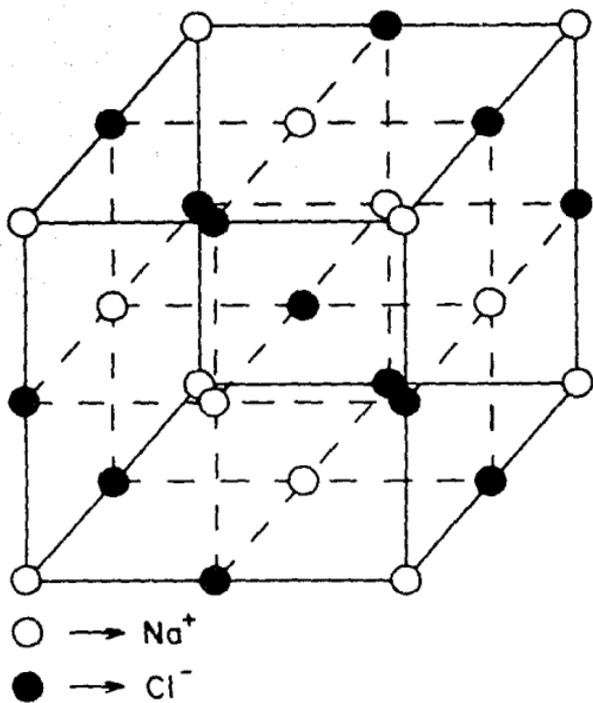


Fig. 1-1

Esquema tridimensional que representa la distribución del NaCl en una red cristalina cúbica.

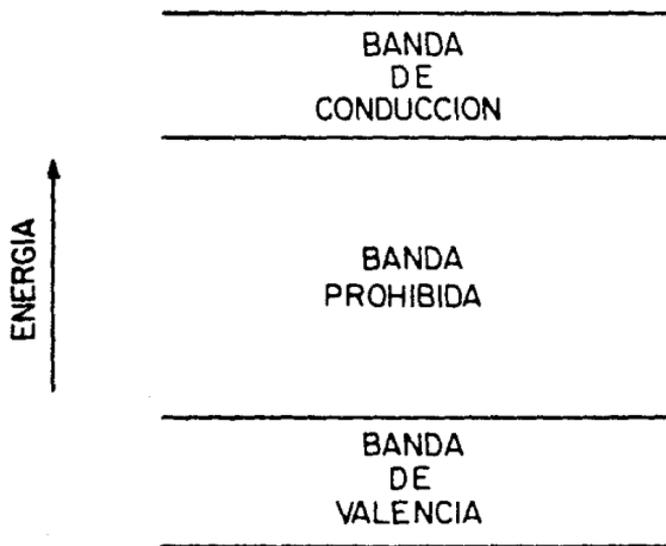


Fig. 1-2

Esquema de bandas de energia de un cristal.

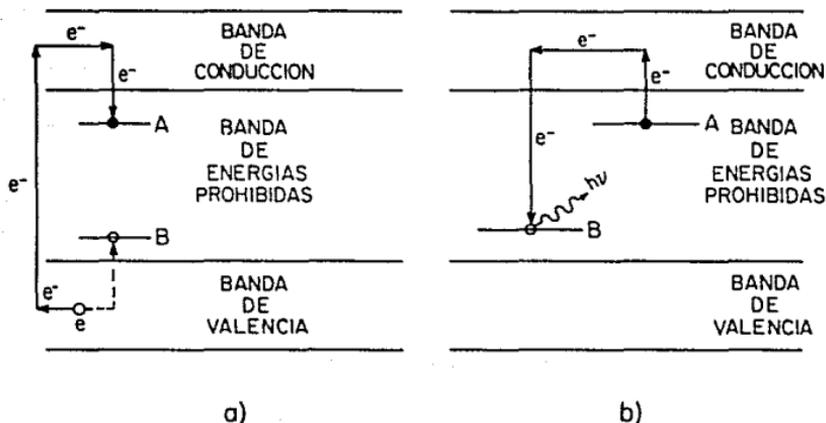


Fig. 1-3

- a) Esquema del mecanismo de excitación de electrones y agujeros en un cristal, utilizando el modelo de bandas.
- b) Esquema del mecanismo de recombinación de los electrones y agujeros excitados en un cristal, utilizando el modelo de bandas.

Considérense dos tipos de imperfecciones, que se llamarán "centros", en una red cristalina:

1) Trampas. Estas pueden ser de electrones o agujeros (un agujero es un defecto de carga negativa que se genera cuando un electrón de la banda de valencia se transfiere a la de conducción). Las trampas de electrones (A) están cerca de la banda de conducción y las de agujeros (B) están cerca de la banda de valencia (Figs. I-3(a) y I-3(b)). Si un e^- adquiere suficiente energía por algún medio (en este trabajo siempre será por radiación) para efectuar una transición de la banda de valencia a la de conducción, tendrá libertad de moverse a través de esta última y eventualmente podrá caer en una trampa para electrones A. El electrón faltante deja un defecto de carga negativa llamada agujero en la banda de valencia que puede, a su vez, caer en una trampa para agujeros B. Así pues, las trampas pueden contener o no tanto electrones como agujeros.

2) Centros Luminescentes. Estos casi siempre se consideran asociados a las trampas, y algunos autores no hacen distinción entre ambos. En el caso del diagrama de la Fig. (I-3(b)), los centros luminescentes o de recombinación para e^- estarán localizados en B y los correspondientes de agujeros, en A. Un centro luminescente debe contener electrones o agujeros atrapados para que pueda ocurrir la recombinación, esto es, debe ser una trampa ocupada.

Si se suministra energía al cristal en forma de calor, un e^- atra-

pado en A (Fig. 1-3(b)) puede adquirir la energía necesaria para subir de nuevo a la banda de conducción de donde puede caer en un centro de recombinación B. Al ocurrir la recombinación se emite un fotón de energía $h\nu$, cuya λ está en la región visible del espectro electromagnético. De manera simétrica puede ocurrir con un agujero. La pareja e^- -agujero se llama excitón. La diferencia de energía entre A y la banda de conducción se llama profundidad de la trampa para electrones (E) y, correspondientemente, la diferencia de energía entre B y la banda de valencia se llama profundidad de la trampa para agujeros. Pueden existir varias trampas de diferentes profundidades en un cristal y pueden estar más o menos densamente pobladas por e^- o agujeros. Los e^- que logran salir de una trampa de energía dada y llegar a la banda de conducción, tienen una probabilidad dada de llegar a un centro de recombinación (que sea luminiscente), recombinarse y emitir luz. La energía, producto de la recombinación, no siempre emerge en forma de luz visible sino que a veces se invierte en hacer vibrar la red.

En 1945 Randall y Wilkins (Ra, 1945) basados en el trabajo previo de Mott y Gurney (Mo, 1938 y 1940), propusieron un modelo para calcular la probabilidad de escape de los e^- atrapados en una trampa cuya profundidad de energía es E, para una temperatura de calentamiento T del cristal, y fueron capaces de relacionar la curva de brillo con la distribución en profundidad de las trampas en el cristal. La curva de

brillo característica de un cristal se obtiene excitando éste y posteriormente calentándolo durante un intervalo dado de temperatura. Se grafica simultáneamente en el eje de las abscisas la temperatura y en el de las ordenadas la emisión de luz. La curva que se obtiene se llama curva de brillo del cristal bajo estudio.

Randall y Wilkins propusieron que los e^- que pueblan una trampa obedecen a una distribución maxwelliana de energías térmicas y por lo tanto la probabilidad p de un e^- para escapar de una trampa de profundidad E cuando ha sido calentada a una temperatura T , es de la forma:

$$p = s e^{-E/kT} \quad (I-1)$$

donde k es la constante de Boltzmann y s (que es una constante que proviene de considerar la trampa como un pozo de potencial) es el producto entre la frecuencia con que los e^- pegan en los lados del pozo y el coeficiente de reflexión. Este modelo se ha llamado de cinética de primer orden y propone las siguientes simplificaciones:

- 1) El desarrollo se lleva a cabo para una curva de brillo en la que E es univaluada y la rapidez de calentamiento es constante.
- 2) No hay reatrapamiento de los e^- liberados de una trampa. Todos llegan a un centro luminescente y no caen en otra trampa dentro de su recorrido.

Partiendo de las consideraciones anteriores, si se tienen n elec-

trones en la trampa a un tiempo t , entonces el cambio del número de electrones en el tiempo, dn/dt , será igual al producto entre el número inicial de electrones n en la trampa, y su probabilidad de escapar (ec. I-1).

$$\frac{dn}{dt} = -n s e^{-E/kT}, \quad (I-2)$$

de donde,
$$\frac{dn}{n} = -s e^{-E/kT} dt \quad (I-3)$$

Si se llama $\beta = \frac{dT}{dt}$ a la constante de calentamiento, se tiene:

$$\log (n/n_0) = -\int_{T_0}^{T_m} \frac{1}{\beta} s e^{-E/kT} dT \quad (I-4)$$

entonces,
$$n = n_0 e^{-\int_{T_0}^{T_m} \frac{1}{\beta} s e^{-E/kT} dT} \quad (I-5)$$

donde $n_0 = n(t=0)$, $T_0 = T(t=0)$ y T_m es la máxima temperatura de calentamiento.

Ahora bien, la intensidad de brillo I de la luz emitida por los e^- será proporcional a la rapidez de suministro de los e^- a los centros luminiscentes, esto es;

$$I = C \left| \frac{dn}{dt} \right|$$

y por (I-2) y (I-5) se tiene:

$$I = [n_0 C e^{-\frac{J T_0}{\beta}} s e^{-E/kT} dT] s e^{-E/kT} \quad (I-6)$$

Este resultado relaciona la intensidad de brillo con la temperatura de calentamiento para tasa de calentamiento, profundidad de la trampa y material termoluminiscente dados. Esto es, describe la curva de brillo del material bajo estudio. La expresión (I-4) es válida para cristales que contienen trampas de una sola profundidad. Los cristales, en general, tienen trampas de diferentes profundidades, lo cual da lugar a curvas de brillo (Fig. I-4) con varios picos. En ocasiones, cuando ocurren dos o tres picos muy cercanos, éstos no pueden aparecer claramente resueltos.

Posteriormente, Garlick y Gibson (Ga, 1948) encontraron otra relación que describe la curva de brillo, introduciendo la modificación de que la probabilidad de reatrapamiento existe y es igual a la de recombinación.

Otros modelos que introducen mayor grado de dificultad en el desarrollo matemático, pero que intentan aproximarse más al comportamiento real de los cristales, han sido propuestos desde entonces hasta la fecha ((Ha,1960) y (Che,1969)). La termoluminiscencia sigue siendo objeto de estudio, tanto desde el punto de vista del comportamiento y propiedades de los cristales (He,1979), (He,1981), (Mu,1983), (Ru,1986), como desde la perspectiva de la dosimetría termoluminiscente, que se

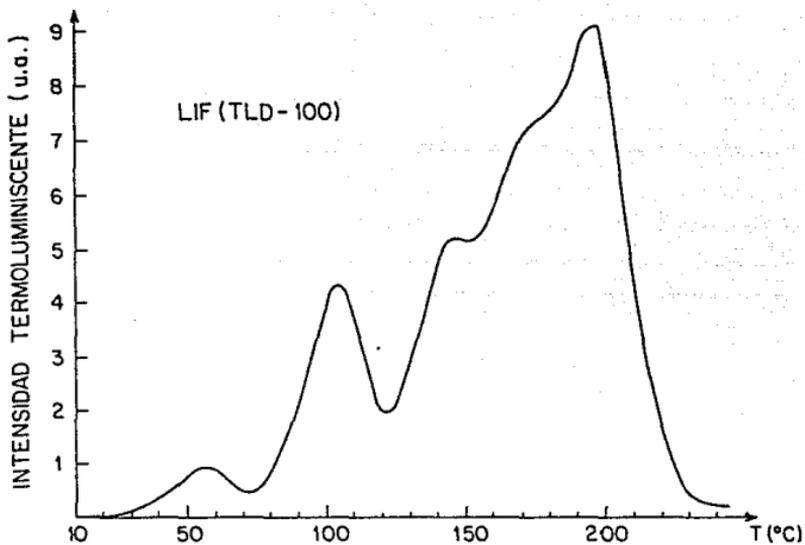


Fig. 1-4

Curva de brillo de un material termoluminiscente (LiF).

aplica en trabajo de investigación y, ampliamente, en prácticas rutinarias de control de dosis.

1.2 HALOGENUROS ALCALINOS CON IMPUREZAS DE EUROPIO

Los materiales luminiscentes ofrecen información sobre su estructura y cambios internos a través del estudio de sus propiedades ópticas. Los halogenuros alcalinos han sido objeto de estudio con preferencia respecto de otros cristales debido a la sencillez de su estructura cristalina y a la relativa facilidad de crecerlos en laboratorios no muy sofisticados.

Diversos intereses, que van desde la física fundamental hasta el empleo de estos materiales en la construcción de láseres o dosímetros termoluminiscentes han inclinado a grupos de investigadores (Mu, 1983) a estudiar las propiedades ópticas de los halogenuros alcalinos con impurezas iónicas de valencia uno y dos y, dentro de este grupo, se ha estudiado también el KBr:Eu que es el material de investigación en este trabajo.

Propiedades Ópticas:

a) Espectro de Absorción.- Si los cristales mencionados en el párrafo anterior se iluminan con radiación electromagnética en la región UV, son capaces de absorberla. El espectro de absorción es la proporción de luz absorbida para cada longitud de onda λ de luz incidente. El es-

intervalos entre ellas que corresponden a energías que no pueden poseer los electrones. Estos intervalos se llaman bandas prohibidas. La banda llena de más baja energía se llama banda de valencia y la banda no llena de más alta energía se llama banda de conducción (Be, 1963). La Fig. (I-2) muestra un esquema de bandas que no se traslapan.

Hasta ahora, se ha hablado de un hipotético cristal perfecto y puro. En general, los cristales presentan imperfecciones y las propiedades que éstas les confieren son las que dan lugar al fenómeno de la termoluminiscencia. Las imperfecciones relacionadas con este último, pueden agruparse a grandes rasgos como:

- 1) defectos térmicos o intrínsecos;
- 2) defectos ocasionados por impurezas existentes en el cristal (añadidas de manera intencional y controlada, o accidental y no controlada); y
- 3) defectos inducidos por la radiación.

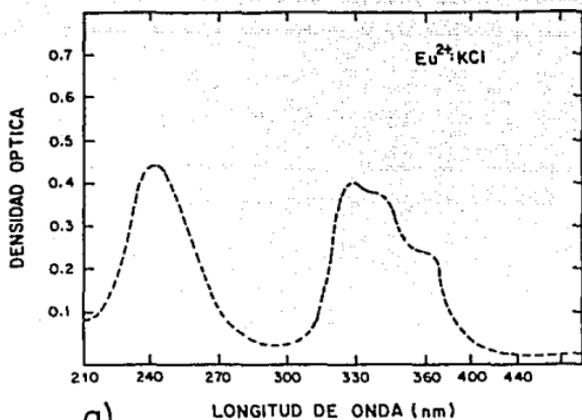
La existencia de imperfecciones en el cristal genera la creación de estados energéticos llamados "estados localizados", en la región que correspondería a la banda prohibida en un cristal perfecto.

b) Termoluminiscencia: Un esquema sencillo para explicar el fenómeno de la termoluminiscencia es (Fig. I-3) como se describe a continuación.

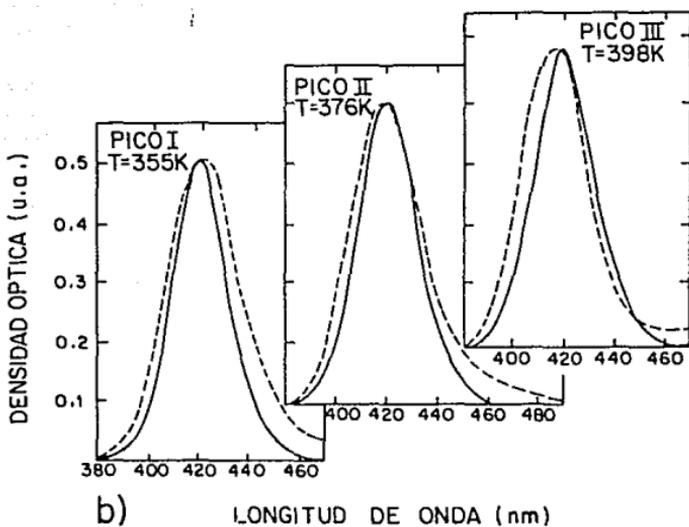
pectro de absorción para estos cristales tiene dos bandas amplias localizadas en la región UV del espectro electromagnético.

b) Espectro de Emisión.- Si se excita el cristal con luz cuya λ corresponde a la del centro de gravedad de alguna de las dos bandas del espectro de absorción, se obtiene un espectro de emisión que, para estos cristales, consta de una sola banda ancha y cuya posición (λ del centro de gravedad) es fuertemente dependiente del halogenuro alcalino huésped para una impureza dada (He, 1981). La Fig. (I-5) muestra un ejemplo de espectro de absorción y uno de emisión para halogenuros alcalinos. La línea continua en la Fig. (I-5(b)), representa el espectro de emisión del KBr:Eu irradiado con Rayos-X y, posteriormente, calentado a las temperaturas de los diferentes picos de la curva de brillo. La línea punteada representa el espectro de emisión del KBr:Eu, excitado con luz ultravioleta y, simultáneamente, calentado a las temperaturas de los diferentes picos de la curva de brillo. Se observa que la λ de máxima emisión es muy semejante en ambos experimentos.

El estudio de los espectros, tanto de absorción como de emisión de los cristales halogenuros alcalinos, aporta valiosa información acerca de los procesos de transferencia de energía que tienen lugar en los cristales cuando son excitados (Ru, 1986a) con luz o radiación ionizante, así como de la concentración de impurezas en el cristal huésped (He, 1979) y el estado de incorporación de la impureza en el



a)



b)

Fig. 1-5

a) Espectro de absorción óptica a temperatura ambiente para el KCl:Eu (Ru,1986a).

b) Espectros de emisión óptica en KBr:Eu (He,1990).

crystal (Mu,1983). Existen impurezas que son buenas absorbedoras y buenas emisoras de energía, hay otras que son sólo buenas absorbedoras y finalmente, las que son solamente buenas emisoras. La transferencia de energía en un cristal con impurezas y -como consecuencia- con centros luminiscentes puede ocurrir como sigue:

- i) Los procesos de absorción y emisión ocurren en el mismo centro; o
- ii) El proceso de absorción ocurre en un centro (absorbedor). Posteriormente hay transferencia de energía del absorbedor a otro centro que será el emisor. La transferencia de energía puede ser radiativa o no radiativa. Ambas transferencias pueden explicarse a partir del principio de Frank-Condon (diagrama configuracional) (De,1975; Ru,1986a).

Si se grafican el espectro de emisión de un centro luminiscente absorbedor de energía y el espectro de absorción de un centro luminiscente emisor de energía entre los cuales puede llevarse a cabo un proceso de transferencia de energía, ambos espectros se traslapan en un intervalo de longitudes de onda. El intervalo de traslape se relaciona con la probabilidad de que ocurra la transferencia de energía de un centro a otro (Ru,1986a).

La proporción de luz absorbida por el pico de alta energía (Fig. I-5) del espectro de absorción (debidamente calibrado por una constante A que se mide usando espectrometría de absorción atómica), da una medida de la concentración de impurezas presentes en el

cristal. Para el caso del Eu^{2+} en varios halogenuros alcalinos como cristal huésped, Hernández y colaboradores (He, 1979) han evaluado esta constante A, que relaciona de manera muy sencilla la concentración N (ppm) con la absorbancia α (cm^{-1}). A no tiene unidades porque es un porcentaje.

$$N \text{ (ppm)} = A \alpha \text{ (cm}^{-1}\text{)}.$$

Una gran ventaja de este método es que la técnica para realizar la medida no es destructiva.

Otra información que puede obtenerse a través del estudio del espectro de emisión es el estado de agregación de la impureza en el cristal huésped. Esta medida está basada en la diferencia que existe entre los estados cuánticos de energía de un ion Eu^{2+} aislado y los de un conglomerado de iones (que los autores llaman agregado). Habrá un corrimiento de los niveles de energía conforme más se agrupan los iones de Eu^{2+} . Este corrimiento modifica la λ de emisión del Eu^{2+} y por lo tanto, el centro de gravedad de la banda de emisión. Varios autores han reportado medidas de la relación entre los diferentes estados de agregación del Eu^{2+} en varios halogenuros alcalinos y la longitud de onda de emisión y se encuentran referidos en (Mu, 1983, pags. 103-104).

La culminación de los trabajos mencionados anteriormente fue el desarrollo de un modelo teórico que explica la influencia de la forma-

ción de agregados de impurezas dentro del cristal en la generación de centros F para el caso de los halogenuros alcalinos (Ru,1986) cuando están sujetos a irradiación. En este trabajo se concluye también que las impurezas actúan como trampas tanto de electrones como de agujeros.

1.3 CONCEPTOS DE DOSIMETRIA

La dosimetría se ocupa de la determinación de la dosis absorbida en un material que ha sido irradiado con radiación ionizante, e incluye la determinación de otras cantidades importantes desde el punto de vista radiológico, algunas de las cuales se definirán adelante. Se refiere al lector a los libros de texto (Hi,1956; At,1986; Ho,1970), para un tratamiento más extenso del tema.

1.3.1 DEFINICIONES

Se definirán a continuación algunas cantidades frecuentemente utilizadas en la dosimetría de la radiación (Hi,1956; Sp,1964; At,1986; Ho,1970).

a) Energía Transferida (e_{tr}) en un volumen V por la radiación ionizante que se hace incidir en él:

$$C_{tr} = (R_{en\ nc}) - (R_{sal\ nc})^{no\ rad} + \Sigma Q \quad (I-7)$$

donde:

$(R_{en\ nc})$ = energía radiante de las partículas no cargadas que entran al volumen V;

$(R_{sal\ nc})^{no\ rad}$ = energía radiante de las partículas no cargadas que salen de V, exceptuando la generada por pérdidas radiativas de energía cinética de partículas cargadas mientras permanecen en V;.

ΣQ = energía neta obtenida a partir de la masa en reposo dentro de V (si la masa se transforma en energía, ΣQ es positiva y si la energía se transforma en masa, ΣQ es negativa).

b) Kerma: Se define el kerma en un punto P dentro de un volumen V como:

$$K = \frac{d(C_{tr})_e}{dm} \left(\frac{J}{kg} \right) \quad (I-8)$$

donde:

$(C_{tr})_e$ = valor esperado de la energía transferida en el volumen finito.

"Kerma es el valor esperado de la energía transferida a partículas cargadas por unidad de masa en el punto de interés, incluyendo pérdidas radiativas de energía pero excluyendo la energía que pasa de una partícula cargada a otra".

El kerma se divide en dos partes, K_c (kerma de colisiones) y K_r

(kerma radiativo)

$$K = K_c + K_r \quad (I-9)$$

El kerma de colisiones es el valor esperado de la energía neta transferida a partículas cargadas por unidad de masa en el punto de interés dentro de un volumen V, excluyendo tanto pérdidas radiativas de energía como energía que pasa de una partícula cargada a otra.

c) La tasa de Kerma es:

$$K = \frac{dK}{dt} = \frac{d}{dt} \left(\frac{d\epsilon_{tr}}{dm} \right) \quad (\text{J/kg.s}) \quad (I-10)$$

d) Dosis Absorbida:

$$D = \frac{d\epsilon}{dm} \quad (\text{Gy}) \quad 1 \text{ Gray (Gy)} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}} \quad (I-11)$$

La dosis absorbida D, es el valor esperado de la energía impartida a la materia por unidad de masa en un punto P de interés dentro de un volumen V. La energía impartida se define como:

$$\epsilon = (R_{en})_{nc} - (R_{sal})_{nc} + (R_{en})_c - (R_{sal})_c + \Sigma Q \quad (I-12)$$

donde:

$(R_{en})_{nc}$ = energía radiante de partículas no cargadas que entran al volumen V.

$(R_{sal})_{nc}$ = energía radiante de partículas no cargadas que salen del

volumen V.

$(R_{en})_c$ = energía radiante de partículas cargadas que entran al volumen V.

$(R_{sa})_c$ = energía radiante de partículas cargadas que salen del volumen V.

ΣQ se definió después de (I-7)

e) Tasa de dosis absorbida:

$$D = \frac{dD}{dt} = \frac{d}{dt} \left(\frac{dc}{da} \right) \text{ (Gy/s)} \quad (I-13)$$

f) Poder de Frenado:

El valor esperado de la pérdida de energía por unidad de longitud (x) recorrida por una partícula cargada de tipo Y y energía cinética T, en un medio de número atómico Z, se llama su poder de frenado $(dT/dx)_{Y,T,Z}$, en unidades de energía entre longitud. Dividiendo el poder de frenado por la densidad ρ del medio absorbedor, se obtiene una cantidad llamada poder másico de frenado $(dT/\rho dx)$, en unidades de energía por área entre masa.

El poder de frenado puede dividirse en dos componentes: una de colisiones y otra radiativa.

$$\left(\frac{dT}{\rho dx} \right) = \left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_c + \left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_r \quad (I-14)$$

g) Transferencia Lineal de Energía (TLE)

$$L_{\Delta} = \left(\frac{dE}{dl} \right)_{\Delta} \quad (I-15)$$

La transferencia lineal de energía de un material, para partículas cargadas, es el cociente de dE y dl , donde dE es la energía perdida por una partícula cargada al atravesar una distancia dl debida a aquellas colisiones con electrones en las cuales la pérdida de energía es menor que Δ (ICRU, 1980).

1.3.2 RELACION DE BRAGG-GRAY:

La dosis absorbida por un material irradiado con una fluencia ϕ de partículas cargadas de energía cinética T puede expresarse como:

$$D = \phi \left(\left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_c \right)_T \quad (\text{At, 1986, cap. 8}) \quad (I-16)$$

donde $\left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_c$ es el poder másico de frenado por colisiones para el material específico irradiado, y T es la energía de las partículas cargadas incidentes.

Sea un haz de partículas cargadas idénticas, cuya fluencia es ϕ (part/área) y cuya energía cinética es T . Estas pasan a través de una

interfase entre dos medios distintos llamados g y w, como se muestra en la Fig.(I-6). Así pues, puede escribirse para D_g , la dosis absorbida en el medio g de la interfase,

$$D_g = \phi \left(\left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,g} \right)_T \quad (I-17)$$

y en el lado w:

$$D_w = \phi \left(\left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,w} \right)_T \quad (I-18)$$

Si se supone que ϕ es continua a través de la interfase, puede escribirse:

$$\frac{D_w}{D_g} = \frac{\left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,w}}{\left(\frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,g}} \quad (I-19)$$

El problema que intenta resolver la teoría de Bragg-Gray es determinar la dosis absorbida en un medio 1 a través de medir la dosis absorbida por otro medio 2, llamado de prueba, que se inserta en el primero. El medio de prueba se llama la cavidad.

Sea una región de un medio homogéneo en el cual se introduce una capa fina o "cavidad" llena con un medio distinto g, como se ve en la Fig.(I-7). Supóngase que se hace pasar a través de ésta un haz de partículas cuya fluencia es ϕ .

Existen dos condiciones que deben cumplirse para continuar el

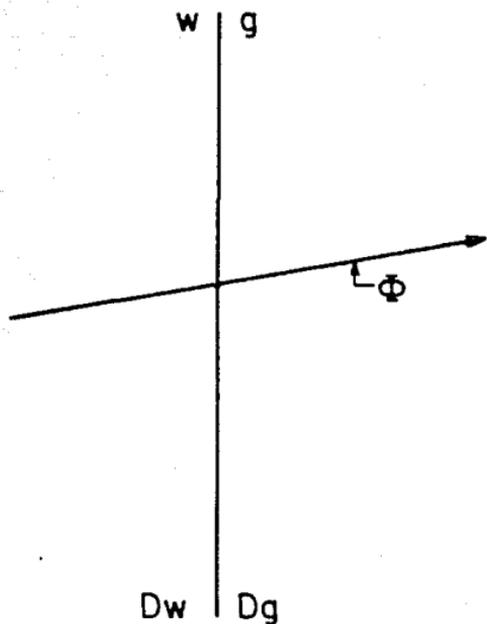


Fig. I-6

Esquema de un haz de partículas cargadas, de fluencia ϕ y energía cinética T , pasando a través de dos medios diferentes, g y w (At,1986)

desarrollo:

1.- El espesor de la capa g debe ser suficientemente pequeño en comparación con el alcance de las partículas cargadas que pegan en ella, de tal manera que la presencia de la cavidad no perturba el campo de partículas cargadas.

2.- La dosis absorbida en la cavidad es depositada en su totalidad por las partículas cargadas que la atraviesan.

El poder de frenado está definido para un haz monoenergético de partículas cargadas; cuando el haz está integrado por un espectro de energías, hay que sumar todas las contribuciones, pesadas convenientemente, y se obtiene el promedio del poder másico de frenado ($\bar{m}\bar{S}$), que también puede dividirse en dos componentes: de colisiones y radiativa. Así, la ecuación (I-19) se transforma, para el caso más general en que el haz de partículas cargadas no es monoenergético, en la expresión:

$$\frac{D_w}{D_g} = \frac{\bar{m}\bar{S}_w}{\bar{m}\bar{S}_g} = \bar{m}\bar{S} \frac{w}{g} \quad (I-20)$$

La ecuación (I-20) es la relación de Bragg-Gray en términos de la dosis absorbida en la cavidad.

Conviene, cuando se trata de estimar la dosis en un medio a través de medir la dosis depositada en una cavidad inserta en dicho medio, que el medio de la cavidad sea lo más parecido posible a aquél cuya dosis se desea determinar. De este modo, $\bar{m}\bar{S}_w$ y $\bar{m}\bar{S}_g$ son muy parecidos y

el cociente entre ellos en la ec. (I-20), tendrá una incertidumbre pequeña.

Existen medios que, por su semejanza en composición a otros que son muy importantes de medir, se convierten en medios de referencia. Tal es el caso del agua, cuya composición es muy semejante a la del tejido humano.

Existen otras teorías de cavidades en las que se supera la limitación de las dimensiones de la cavidad de la relación de Bragg-Gray (Sp, 1965), (Bu, 1966 y 1968).

Se dice que existe equilibrio de partícula cargada (EPC) en un volumen V de interés, si al ser irradiado con radiación indirectamente ionizante, las partículas cargadas secundarias que se generan fuera del volumen de interés y que son capaces de penetrar en éste, son totalmente sustituidas por un número idéntico de partículas cargadas secundarias que se formaron dentro del volumen de interés y lograron escapar, de tal manera que sólo se contabiliza el número de partículas cargadas secundarias formadas dentro del volumen. En la práctica, el EPC se logra rodeando el volumen de interés con material equivalente al que existe dentro del volumen, cuyo grosor es igual o mayor al alcance de las partículas cargadas secundarias generadas por la radiación indirectamente ionizante incidente.

I.3.3 DOSIMETROS

Un dosímetro puede definirse como un dispositivo capaz de mostrar una lectura r , que es una medida de la dosis absorbida D_g en su volumen sensible V , como consecuencia de la energía depositada en V por la radiación ionizante.

Cuando la dosis no es homogénea a través del volumen sensible, entonces r es una especie de valor promedio \bar{D}_g de la dosis. En general, es deseable y se espera que la respuesta r tenga una relación lineal con la dosis absorbida D_g , aunque esto no siempre ocurre o puede ocurrir parcialmente (para un intervalo de dosis).

Como se vio en la sección anterior, cuando se introduce un dosímetro en el medio en el cual se desea medir la dosis, se crea una perturbación en dicho medio. Para minimizar los efectos de dicha perturbación se procura utilizar dosímetros de composición muy parecida a la del medio. Sin embargo la dificultad primordial al medir una dosis es la interpretación de la lectura; esto es, dada una lectura en el dosímetro de medio g relacionarla correctamente con la dosis absorbida en el medio w de interés. Precisamente las distintas teorías de cavidad se aplican a resolver problemas de interpretación.

Se pueden señalar las siguientes características generales de los dosímetros:

1.- Capacidad de ser absolutos: Un dosímetro absoluto puede medir la

dosis absorbida en su volumen sensible de manera autónoma; esto es, no requiere ninguna comparación con un patrón. Se conocen tres tipos de dosímetros absolutos que son:

calorímetros,

cámaras de ionización, y

solución de sulfato ferroso "Fricke".

Los demás dosímetros en uso son no-absolutos o secundarios y requieren ser comparados con uno absoluto (calibrados) para poder usarse.

2.- Precisión y exactitud: La precisión o reproducibilidad de la medida de un dosímetro tiene que ver con errores estadísticos ocasionados por fluctuaciones en las características del instrumental asociado a la medición, condiciones ambientales, etc. y la naturaleza estocástica de los campos de radiación. La precisión puede estimarse a partir de repetir una medida N veces y calcular su desviación normal. La exactitud mide qué tan cerca está el valor esperado de una medida del valor real de la cantidad medida. La cantidad que un dosímetro es capaz de medir con más exactitud es la dosis absorbida en su propio volumen sensible.

3.- Intervalo de dosis en que puede utilizarse: El intervalo de dosis útil para un dosímetro dado depende de tres características:

a) Sensibilidad a la dosis, que se define como:

$$\text{Sensibilidad} = \frac{dr}{dD_0} \quad (1-21)$$

donde r es la respuesta del dosímetro a la radiación y D_0 es la dosis absorbida por el mismo.

Resulta muy conveniente que la sensibilidad tenga un valor constante en todo el intervalo de dosis en el que se desea usar, lo que garantiza una respuesta lineal del dosímetro a la dosis.

b) Límite inferior útil: Es el mínimo valor de dosis que un dosímetro puede leer confiablemente, y puede depender de la capacidad mínima del instrumental utilizado, de la radiación de fondo, y/o del límite de sensibilidad del dosímetro.

c) Límite superior útil: Es el máximo valor de dosis que un dosímetro puede leer confiablemente, y tiene que ver con fenómenos de saturación o de daño en el dosímetro.

4.- Dependencia de la respuesta con la tasa de dosis: Es muy conveniente que no haya dependencia de la respuesta de un dosímetro con la tasa de dosis en que el dosímetro puede usarse. En caso de existir, esta característica puede limitar su funcionamiento, tanto para dosímetros que integran la respuesta en el tiempo, como para aquellos que son medidores de tasa de dosis.

5.- Estabilidad: Es deseable que el comportamiento de los dosímetros sea estable antes, durante y después de la irradiación. Si esto no ocurre, hay que regresarlos a su estado inicial (antes de usarse), o

estimar los cambios ocurridos no ocasionados por la radiación.

6.- Dependencia con la energía: La lectura del dosímetro (r), por unidad de dosis absorbida por el material en su propio volumen, puede depender de la energía de la radiación o calidad del haz. Esta dependencia, asociada con la transferencia lineal de energía, es fundamental y representa la eficiencia en energía del dosímetro, o sea su capacidad para dar la misma lectura para la misma cantidad de energía absorbida en su volumen sensible, independientemente del tipo de radiación que incida o de su calidad.

7.- La geometría del dosímetro debe ser lo más parecida posible a la del volumen de interés del material cuya dosis se va a medir.

1.3.4 DOSÍMETROS TERMOLUMINISCENTES (TLD)

Una vez que se ha descrito brevemente el proceso de la termoluminiscencia (TL) y el quehacer de la dosimetría de la radiación, se puede tratar el caso de un tipo particular de dosímetros que son aquellos que exhiben termoluminiscencia. La respuesta dosimétrica que se mide en un dosímetro TL, que ha sido sometido a irradiación, es la emisión de luz. Como se vió en la sección 1.1, la energía que deposita el haz de radiación en un material TL, excita los e^- del mismo que entonces resultan "capturados en trampas". Al calentar el material se dona energía extra a los e^- , misma que les

permite salir de las trampas y regresar a un centro de recombinación emitiendo luz.

Conforme se va calentando el dosímetro se van vaciando trampas de diferente profundidad. Existen profundidades preferenciales para las trampas, por lo que al calentar a las temperaturas que permiten vaciarlas la emisión de luz es más intensa. Si la rapidez de calentamiento es constante, y si se grafica en el eje de las abscisas la temperatura y en el de las ordenadas la intensidad de luz, se obtiene una curva de brillo que es característica del material irradiado. Esta curva, un ejemplo de la cual se mostró en la fig. (I-4), mostrará máximos de emisión de luz a temperaturas a las que se vacian las trampas más pobladas.

La temperatura a la que ocurre un pico TL es dependiente de la tasa de calentamiento $\beta = dT/dt$, empleada durante la lectura de la señal. Para un material fijo, irradiado a una dosis fija, el pico ocurrirá a mayor temperatura mientras mayor sea la tasa de calentamiento β .

La eficiencia luminosa depende de la temperatura a la que ocurren los picos. La eficiencia luminosa disminuye conforme aumenta la temperatura a la que ocurren los picos (At, 1986).

La probabilidad de que la intensidad de la señal de los picos decaiga espontáneamente a temperatura ambiental, después de la irradiación y antes del calentamiento, depende del valor E de la profundidad de la trampa (ec. I-2): a mayor valor de E, la probabilidad

de decaimiento a temperatura ambiental será menor. Esto es, los picos más estables son los que aparecen a mayores temperaturas. Esta característica de los materiales TL genera una de las propiedades más interesantes de éstos, que consiste en "guardar la información" (la señal TL), por períodos de tiempo que pueden llegar a ser desde unos minutos hasta miles de años.

El parámetro dosimétrico a medir (es decir, la respuesta del dosímetro) puede ser:

- a) El área bajo la curva de brillo,
- b) El área bajo uno o varios de los picos de la curva de brillo, o
- c) La altura de alguno de los picos de la curva de brillo.

Debido a que estas cantidades dependen del volumen del dosímetro, se utilizan debidamente normalizadas por la masa de cada dosímetro.

El equipo convencional de que se dispone permite obtener con relativa facilidad el valor de cualquiera de los parámetros mencionados. Este equipo lector consiste, en general, de una fuente controlada de calentamiento, un tubo fotomultiplicador y el equipo electrónico asociado para integrar en el tiempo la señal eléctrica que sale del tubo fotomultiplicador. En este trabajo se utilizaron las unidades acopladas entre sí marca Harshaw, modelos 2000A y 2000B. La Fig.(1-8) es un esquema que representa las partes fundamentales del equipo. Para detalles del diseño pueden consultarse los manuales correspondientes.

Para obtener la lectura de la señal dosimétrica se coloca el

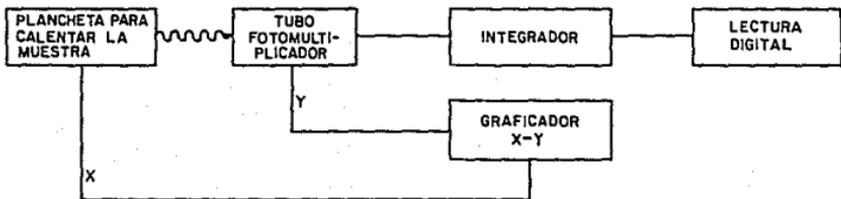


Fig. I-8

Diagrama de las partes fundamentales del equipo lector termoluminiscente.

dosímetro en una plancheta metálica por la que se hace pasar una corriente eléctrica para calentarla. El dosímetro se calienta por contacto y emite luz que llega al tubo fotomultiplicador, convirtiendo la señal luminosa en eléctrica y amplificándola. Esta señal (corriente eléctrica), se integra durante el tiempo total de lectura, de manera que se obtiene un valor de la carga eléctrica que es proporcional a la intensidad total de luz emitida por el dosímetro. La carga es igual al área bajo la curva de brillo.

La siguiente característica de interés para la dosimetría en general - y la dosimetría TL no es una excepción - es la relación que existe entre la respuesta del dosímetro y la dosis absorbida en su volumen. Si en un material bajo estudio la relación resulta ser lineal, por lo menos en un intervalo limitado de dosis, y los valores repetidos N veces de la respuesta a la misma dosis muestran una desviación aceptable respecto del valor promedio, dicho material es buen candidato a ser utilizado como dosímetro TL. Cuando se grafica en el eje de las abscisas la dosis absorbida y en el eje de las ordenadas la respuesta TL, se obtiene una curva de dosis-respuesta. Cuando esa curva es una recta en un intervalo de dosis, se define este último como el intervalo de dosis útil del dosímetro, y ésta es otra de sus características relevantes. La pendiente de la curva dosis-respuesta se denomina la **sensibilidad** del dosímetro, tal como se definió en la ec. (I-21). Las unidades de la sensibilidad son nC/mg . Gy en el caso de eva-

luar la respuesta a partir de las áreas, o nA/mg.Gy en caso de considerar la altura de los picos de la curva de brillo.

Cuando se trabaja con un grupo de dosímetros comerciales, generalmente idénticos en masa, forma, densidad, etc., no es necesario normalizar por la masa individual. Los dosímetros TL no son absolutos y por lo tanto requieren ser calibrados respecto de una fuente de radiación previamente calibrada por un laboratorio autorizado. En general, se toma como fuente de referencia el ^{60}Co pero es más conveniente calibrar con radiación de la misma calidad que la que se va a medir. Es indispensable recurrir a la teoría de cavidades -mencionada brevemente en la sección 1.3.2 (tratamientos detallados pueden encontrarse en At,1986)- y asegurarse de que se irradia en un régimen de equilibrio de partícula cargada (cuando se irradia con rayos X o rayos γ).

Es una práctica común reusar los dosímetros TLs después de que ha sido leída su respuesta, ya que la lectura "borra" la información contenida en ellos y les permite retornar a su estado original. Como puede ocurrir que el "borrado" no sea 100% eficiente y quede información residual en los cristales TL, se acostumbra hornearlos después de la lectura y antes de volverlos a usar, a temperaturas e intervalos de tiempo convenientes (generalmente prefijados) para asegurar un borrado completo.

Los dosímetros TL suelen ser muy sensibles a los horneados, y cada material requiere procedimientos de horneado bien establecidos y par-

ticulares para lograr éxito en el borrado y no alterar otras de sus características. A pesar de observar cuidadosamente las instrucciones de horneado, cada lote de cristales TL debe calibrarse nuevamente después de cada horneado porque su sensibilidad puede cambiar notoriamente (más del 50% respecto de la anterior al horneado).

Se pueden mencionar algunas ventajas generales del uso de dosímetros termoluminiscentes.

- 1.- Pueden utilizarse en un intervalo amplio de dosis (el TLD-100, que es un dosímetro de LIF fabricado por Harshaw, funciona desde aproximadamente 10^{-4} hasta 10^2 Gy.)
- 2.- Su respuesta es independiente de la tasa de dosis en un intervalo amplio ($0-10^9$ Gy/s)
- 3.- Su tamaño pequeño y su composición les permite aproximarse a una cavidad de Bragg-Gray para lecturas en tejido humano.
- 4.- Son reusables, lo cual reduce su costo.
- 5.- Su lectura es sencilla y razonablemente rápida.
- 6.- Puede obtenerse una buena precisión si se tiene un buen control en el procedimiento de calibración.

Algunas de sus desventajas son:

- 1.- Falta de uniformidad.- Cada lote de dosímetros debe calibrarse, pues hay diferencias en la sensibilidad entre los lotes y entre los dosímetros individuales que componen un lote.
- 2.- Inestabilidad durante el almacenamiento.- Como ya se mencionó,

puede haber cambios en la sensibilidad del dosimetro mientras está guardado y se requiere hornearlo adecuadamente para restablecer su estado inicial.

3.- Decaimiento.- En mayor o menor medida el valor de la respuesta del dosimetro a la dosis absorbida decae durante el tiempo posterior a la irradiación. Si se conoce la constante de decaimiento y el tiempo transcurrido entre irradiación y lectura, puede corregirse esta deficiencia.

4.- Sensibilidad a la luz, especialmente UV, solar y fluorescente . La exposición de los TLD a la luz puede, tanto disminuir como aumentar, el valor de la respuesta a una dosis dada.

5.- Sensibilidad al medio ambiente y al manejo poco delicado.

6.- Almacenamiento de información residual y dependencia con la historia térmica.

7.- Pérdida de la información con la lectura.

I.4 HALOGENUROS ALCALINOS CON EUROPIO COMO DOSIMETROS TERMOLUMINISCENTES.

Como se vió en la sección I.2, los halogenuros alcalinos con Eu muestran propiedades TL muy interesantes cuando se irradian con rayos X, y una pregunta que surge de manera natural es si estos materiales podrán servir como dosímetros; esto es, si además de tener propiedades

TL tienen propiedades dosimétricas. En una revisión bibliográfica se encontraron un par de ejemplos, que fueron los únicos antecedentes al respecto. Uno de ellos (Ca,1988), estudia las propiedades dosimétricas del KCl:Eu y concluye que es un buen candidato a dosímetro TL, con algunas limitaciones.

El presente trabajo tiene como objetivo fundamental el estudio de un halogenuro alcalino particular, KBr con impurezas de Eu, para evaluar su capacidad como dosímetro TL. La radiación usada en este estudio consiste en rayos γ del ^{60}Co y β^- de una fuente de ^{90}Sr - ^{90}Y . Se estudiaron:

- a) Tratamientos térmicos
- b) Curvas de brillo
- c) Reproducibilidad
- d) Decaimiento
- e) Curvas de dosis-respuesta

CAPITULO II

METODO EXPERIMENTAL

II.1 MUESTRAS

Tal como se expuso al final del capitulo anterior el objetivo fundamental de este estudio es la caracterización de las propiedades dosimétricas termoluminiscentes del KBr:Eu, tales como la curva de brillo típica, la sensibilidad, el intervalo de respuesta a la dosis de radiación absorbida y la linealidad en dicha respuesta.

El trabajo se llevó a cabo estudiando 7 lotes de KBr:Eu. Los tres cristales, de donde se originaron estos lotes elaborados con distintas concentraciones nominales de Eu (0.01%, 0.1% y 1.0%), fueron crecidos en el IFUNAM, a partir de KBr y EuBr_2 , utilizando el método Czochralsky, por el técnico académico Ricardo Guerrero.

Las muestras se cortaron de los cristales originales, procurando que tuvieran forma y dimensiones similares, aunque algunas fueron cambiando en el transcurso del estudio porque se fracturaron. Un valor típico de dimensiones sería 1x1x5 mm. Algunas ventajas de la unifor-

TABLA II.1

CARACTERÍSTICAS DE LAS MUESTRAS DE KBr:Eu ESTUDIADAS

Lote	Concentración nominal de europio (%)	Intervalo de masas (mg)	Tratamiento térmico*
AM	0.1	14-32	M
TAM	0.1	15-30	M
BM	0.01	22-24	M
EM	1.0	12-31	M
H5	0.1	18-30	5
H6	0.1	15-22	6
H6S	0.1	15-22	6S
LIF	—	23.4-23.6	T

* Se describen en la tabla II-2

La igualdad en las dimensiones son: igual superficie de contacto con la plancheta lo que asegura eficiencia en el calentamiento e igual auto-absorción de la luz emitida por el cristal al calentarlo, en caso de existir. La tabla II.1 muestra las características de los lotes de cristales de KBr:Eu utilizados en el estudio.

El equipo y material que se utilizó para el trabajo experimental se describe a continuación. Para irradiar las muestras se usaron dos tipos de fuentes radiactivas cuya disposición se muestra en la Fig. (II-1): una de ^{60}Co cuya tasa de dosis en el momento de iniciar el estudio era de 2.22×10^{-5} Gy/s, y cuya cavidad de irradiación está rodeada de lucita con el espesor necesario (4.6 mm) para proveer régimen de equilibrio de partícula cargada durante la irradiación. La segunda fuente es de ^{90}Sr con una tasa de dosis de 6.23×10^{-3} Gy/s. Ambas fuentes fueron calibradas previamente por laboratorios autorizados y las dos poseen una geometría fija de irradiación con las tasas señaladas.

El equipo de lectura termoluminiscente usado consta de un lector TL Harshaw, modelo 2000 A, con un intervalo nominal de temperatura de 0 a 600°C , asociado a un integrador de corriente Harshaw modelo 2000 B y a una graficadora XY.

El procedimiento de trabajo consiste en irradiar el cristal a una dosis conocida y posteriormente obtener su señal en el lector, usando una rapidez de calentamiento conveniente y constante (en este trabajo se utilizó una β de aproximadamente 10°C/s) durante el intervalo de temperatura que se desea explorar (una vez fija β , el intervalo de temperatura se fija con el periodo de tiempo que dura la lectura). El cristal emite radiación electromagnética (luz) que se convierte en una señal eléctrica al incidir en el cátodo de un tubo fotomultiplicador.

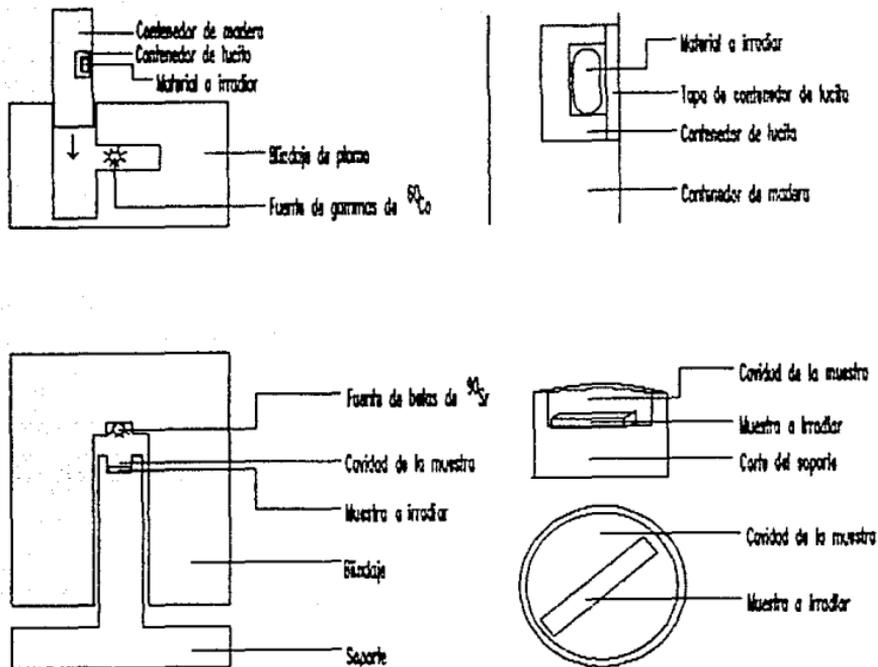


Fig. II-1

a) Esquema de la fuente de ^{60}Co , su blindaje de plomo y el contenedor de la muestra a irradiar, que cabe exactamente por un pasillo y coloca a la muestra justamente frente a la fuente. A la derecha se muestra una ampliación del contenedor de la muestra.

b) Esquema de la fuente de ^{90}Sr , su blindaje de aluminio y su soporte para la muestra a irradiar. A la derecha se muestra una ampliación del soporte y el área de irradiación.

Si el eje X de la graficadora indica la temperatura y el eje Y la corriente eléctrica, lo que se obtiene en cada gráfica es una curva de brillo. El área bajo la curva es la corriente integrada durante el tiempo de lectura, es decir la carga, y es proporcional a la respuesta del cristal a la radiación absorbida y al calentamiento a que se ha sometido. Como se indicó previamente, la comparación entre muestras diferentes requiere normalizar esta respuesta por la masa de la muestra. Así, la respuesta se expresa generalmente en nC/mg.

II.2 TRATAMIENTOS TERMICOS

Los primeros intentos de analizar la respuesta de los cristales a la radiación mostraron que las posiciones y/o alturas de los picos de las curvas de brillo de una muestra dada eran irreproducibles para irradiaciones repetidas en idénticas condiciones. Esta falta de reproducibilidad en el comportamiento de los cristales no permitía un estudio sistemático de sus propiedades.

Los doctores José M. Hernández y Roberto Uribe R. sugirieron la posibilidad de estabilizar la respuesta de los cristales a la radiación sometiéndolos primero a horneados cuyas temperaturas permitieran a los iones de Eu integrarse a la red cristalina y luego enfriándolos rápidamente hasta la temperatura ambiental (Ca, 1988) para "congelar" el estado al que se logró llevar al cristal con el hornea-

do.

Así pues, se hornearon los cristales durante 1 hora a 597°C, siguiendo el procedimiento de (Ca, 1988), sin conseguir la buscada reproducibilidad en la respuesta termoluminiscente. Se decidió entonces, probar otros tratamientos térmicos que pudieran modificar el comportamiento de los cristales y estabilizar su respuesta.

Se diseñaron cuatro tratamientos térmicos que se aplicaron a cuatro lotes del mismo cristal (concentración nominal de Eu de 0.1%). El tratamiento que condujo a los resultados más satisfactorios (en términos de propiedades dosimétricas TL) se reprodujo en muestras con otras concentraciones de Eu (0.01 y 1.0 %). La tabla II.2 indica el tipo de tratamiento térmico a que fue sometido cada lote de cristales.

El equipo utilizado para hornear consistió en una mufia Lindberg que opera en un intervalo de temperaturas de 230-1150±5°C, previamente calibrada con un termopar. Una plancha de granito cuyas dimensiones son 30x44x7 cm permitió a la muestra -por contacto- llegar desde la temperatura del horno hasta la ambiental en un tiempo muy corto (entre 30 y 60 seg).

Después de cada horneada las muestras fueron irradiadas a una dosis testigo de 0.2 cGy y se leyó su respuesta.

Nótese que en la tabla II.1 se incluyen muestras de LiF comercial (TLD-100), cuyo tratamiento térmico (T) es el recomendado por los fabricantes. Este cristal sirvió siempre como control en los procedi-

TABLA II.2

DESCRIPCION DE LOS TRATAMIENTOS TERMICOS A QUE FUERON SOMETIDOS LOS
CRISTALES DE KBr:Eu.

Nombre	Descripción del tratamiento
M	6 horneadas a 450 ^o C de una hora de duración seguidas de 6 horneadas a 600 ^o C de una hora de duración. Después de cada horneada se enfrían bruscamente las muestras a la temperatura ambiente.
5	6 horneadas a 500 ^o C de una hora de duración y enfriamiento brusco.
6	6 horneadas a 600 ^o C de una hora de duración y enfriamiento brusco.
65	6 horneadas a 600 ^o C de media hora de duración y enfriamiento brusco.
T	1 horneada a 400 ^o C de una hora de duración y se deja llegar a la temperatura ambiental naturalmente dentro del horno.

mientos experimentales, ya que ha sido muy estudiado y ampliamente ca-

racterizado (Ca, 1968; Ho, 1984). Más adelante se verá su uso para ubicar los picos en las curvas de brillo del KBr:Eu y como control en las curvas de dosis-respuesta.

II.3 CURVA DE BRILLO

Después de cada horneada, los cristales fueron irradiados a una dosis testigo (0.2 cGy), leídos y graficada la señal, obteniéndose la curva de brillo correspondiente. Un primer resultado de todos los tratamientos térmicos que se ensayaron fue -como se esperaba- la estabilización (dentro del 15%) de los picos de las curvas de brillo del KBr:Eu, tanto en su posición en el eje de la temperatura (temperatura de emisión) como en la altura de los mismos. Durante las diversas etapas de los TT se observa la evolución de los diferentes picos de las curvas de brillo. La serie de figuras de (II-2) hasta (II-4) muestra cómo algunos picos crecen hasta en un orden de magnitud, otros se inhiben y prácticamente todos cambian su temperatura de emisión a medida que el TT avanza.

Tomando como ejemplo la fig. (II-2), se observa que la curva de brillo del lote AM anterior al TT muestra un pico a 50°C, otro aproximadamente a 82°C, un tercero cerca de los 130°C y un cuarto en 188°C; la altura máxima (pico 3) vale 1.45 nA. A la mitad de los TT el pico 1 ha desaparecido, el 2 ha crecido de aproximadamente 1.1 nA hasta cerca

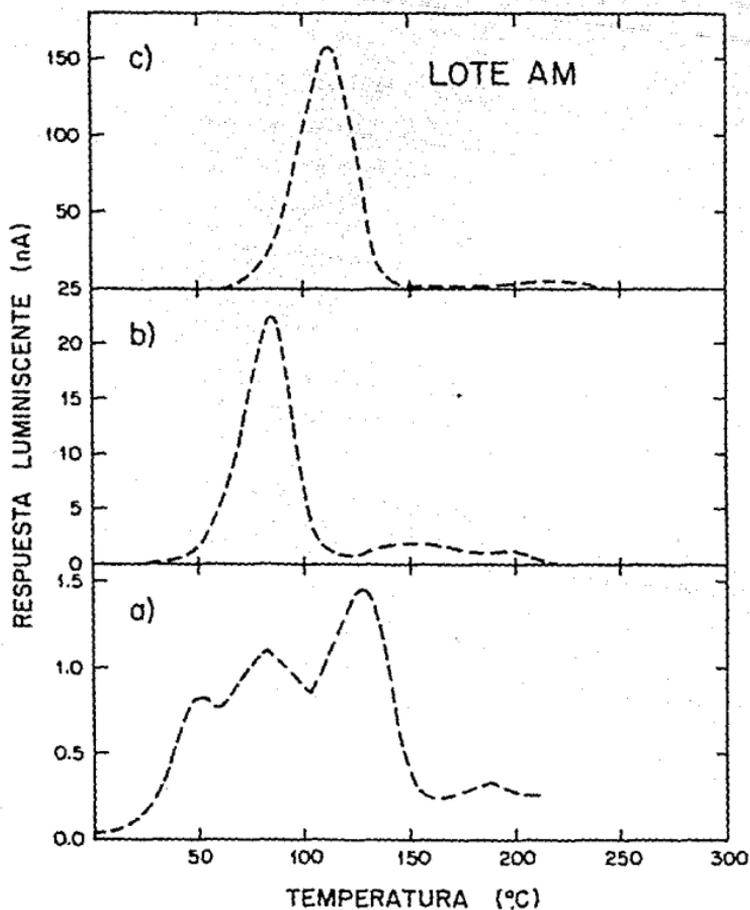


Fig. 11-2

Evolución de la curva de brillo del lote AM en tres etapas del tratamiento térmico a que se sometió: a) antes del TT; b) a la mitad del TT y c) al final del TT.

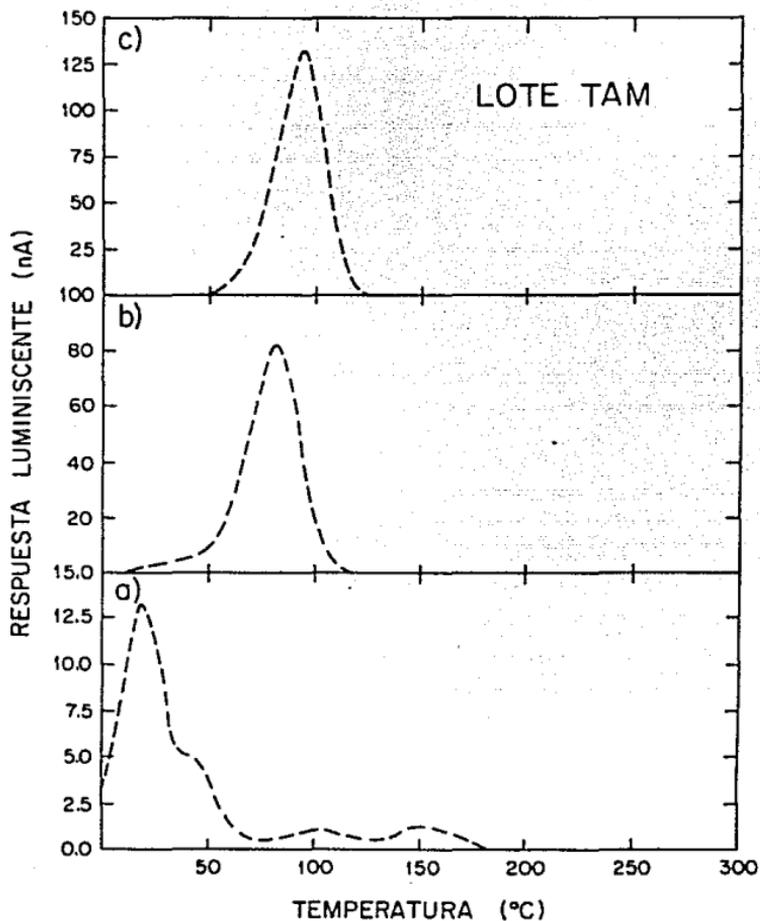


Fig. 11-3

Evolución de la curva de brillo del lote TAM en tres etapas del tratamiento térmico a que se sometió: a) antes del TT; b) a la mitad del TT y c) al final del TT.

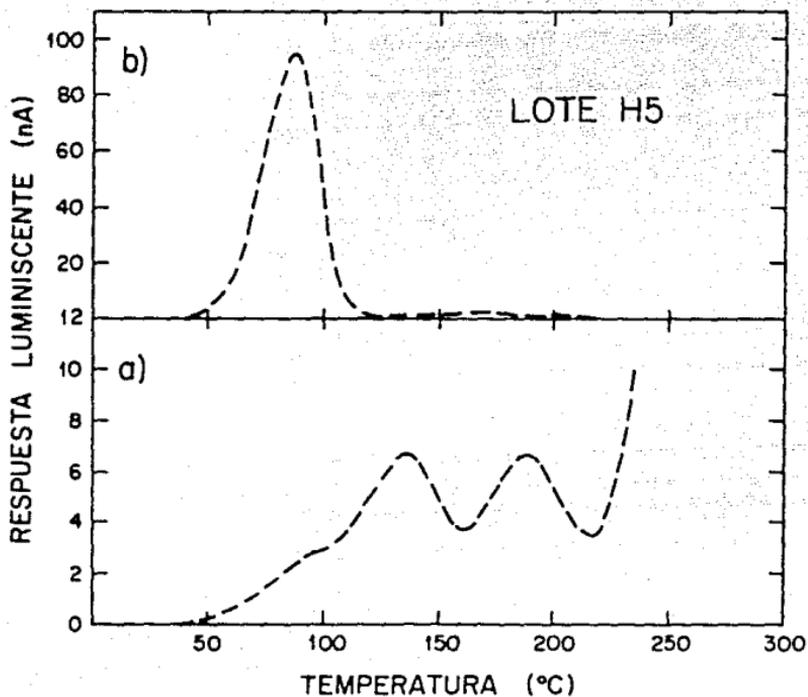


Fig. 11-4

Evolución de la curva de brillo del lote H5 en dos etapas del tratamiento térmico a que se sometió: a) antes del TT y b) al final del TT.

de 23 nA, el tercero ha cambiado su temperatura de emisión a 155°C aunque su altura no cambia notoriamente. El pico 4 cambia su posición unos 10°C y crece de 0.35 a 1.0 nA. Al final de los TT quedan dos picos: uno en 110°C con una altura cercana a los 160 nA y otro en 220°C a una altura aproximada de 5 nA. Esta última curva de brillo se mantuvo sin cambios durante las irradiaciones y almacenamiento posteriores. Algo semejante ocurre en las figs. (II.3) y (II.4), que corresponden a los cambios sufridos por los lotes TAM y H5 respectivamente, durante los tratamientos térmicos a que fueron sometidos. TAM es particularmente interesante porque se trata de una muestra tomada del mismo cristal que AM (concentración nominal de europio de 0.1 %), sometida al mismo tratamiento térmico que AM (mixto). Esto es, se está reconstruyendo AM. Puede verse que las curvas de brillo de AM y TAM anteriores a los TT son diferentes entre sí, pero al final de los TT se uniformizan tanto en la posición de los picos como en la altura de éstos para la dosis testigo. Así pues, una consecuencia de los TT es que, muestras de un mismo cristal que no responden originalmente de la misma forma a la radiación, uniformizan su respuesta después de someterse a los TT.

El método para estimar las temperaturas de emisión en las curvas de brillo de las muestras a estudiar (fig. II-5) consistió en irradiarlas junto con muestras testigo de LiF (TLD-100) y graficarlas ambas durante la lectura, cuidando de mantener las condiciones de lectu-

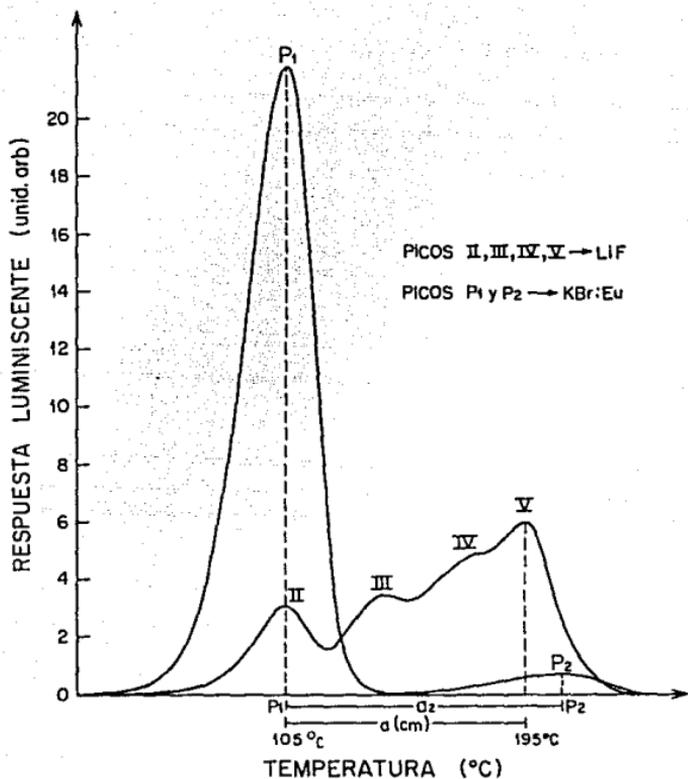


Fig. 11-5

Método para ubicar los picos de emisión de una curva de brillo de KBr:Eu, comparándola con los picos de emisión del LIF.

ra y graficación idénticas en todos los casos (voltaje de operación ventana de lectura, escala de corriente, temperatura de inicio de graficación y escalas de la graficadora). Se obtienen dos curvas de brillo, una para KBr:Eu y otra para LiF. Las posiciones de los picos de éste último son conocidas con precisión, por lo que se mide la distancia "a" entre los picos II y V del LiF y se sabe que el pico II ocurre a los 105°C y el V a los 195°C (Ca, 1968), entonces:

$$x = \frac{195-105 (^{\circ}\text{C})}{a \text{ (cm)}} \quad (\text{II-1})$$

donde x es el número de grados centígrados que corresponden por cm en el eje de las abscisas.

Después, se toma como referencia cualquiera de los dos picos de LiF (II o V) y se mide su distancia a todos los picos del KBr (en este ejemplo P_1 y P_2).

Sean: a_1 la distancia de II a P_1 (en este ejemplo vale cero pues II y P_1 coinciden), y

a_2 la distancia de II a P_2 , entonces:

$$P_1 (^{\circ}\text{C}) = 105 (^{\circ}\text{C}) + \frac{90 (^{\circ}\text{C})}{a \text{ (cm)}} a_1 \text{ (cm)} = 105^{\circ}\text{C} + 0 = 105^{\circ}\text{C} \quad (\text{II-2})$$

$$P_2 (^{\circ}\text{C}) = 105 (^{\circ}\text{C}) + \frac{90 (^{\circ}\text{C})}{a \text{ (cm)}} a_2 \text{ (cm)} \quad (\text{II-3})$$

donde -por supuesto- se considera que $\beta = dT/dt$, permanece constante. En la tabla II.3. se encuentra la lista de las temperaturas a que ocurren los picos de emisión para cada lote, después de terminado el tratamiento térmico.

II 4 SENSIBILIDAD

Un segundo resultado -totalmente inesperado- de los tratamientos térmicos, es que en todos los casos conducen a un aumento en la sensibilidad del cristal, tal como se definió en la ec. I-21.

Para cada uno de los TT mostrados en la tabla II.2, después de cada horneado o periodo de almacenamiento (lapso de tiempo en que simplemente se guardaba el cristal), se irradiaban las muestras a una dosis fija (0.2 cGy), leyendo su respuesta y graficando su curva de brillo.

En las figuras (II-6) hasta (II-8) se observan los cambios que va sufriendo la sensibilidad del KBr:Eu durante las etapas de los distintos procesos de horneado. Nótese que en el eje de las abscisas se grafica simplemente tiempo y no número de horneadas a una temperatura dada, porque también había cambios en la sensibilidad del cristal después de periodos de almacenamiento. Las flechas en las figuras indican en qué momento del tratamiento ocurrieron las horneadas. En el eje de las ordenadas se habla de cambios en la sensibilidad, aunque realmente

TABLA II.3

TEMPERATURAS A QUE OCURREN LOS PICOS DE EMISION TL PARA LOS DIFERENTES
 LOTES DE CRISTALES DE KBr:Eu, SOMETIDOS A TRATAMIENTOS TERMICOS.

Muestra	Temperatura (°C)			
	P ₀	P ₁	P ₂	P ₃
AM		97±8	203±7	
BM	41±7	75±6	152±6	229±7
EM		88	129	
TAM		85±10	154±6	
H5		85±7	169±13	
H6		82±8	180±19	
H65		86±9	158±10	

se está graficando la respuesta normalizada por la masa. Sin embargo esta respuesta está siempre referida a la misma dosis, que se ha llamado con anterioridad "dosis testigo". Puede notarse que se producen cambios drásticos en la sensibilidad de los cristales posterior a los tratamientos térmicos respecto de aquélla anterior a los TT. La respuesta de los diferentes lotes dependió de dos parámetros: la concen-

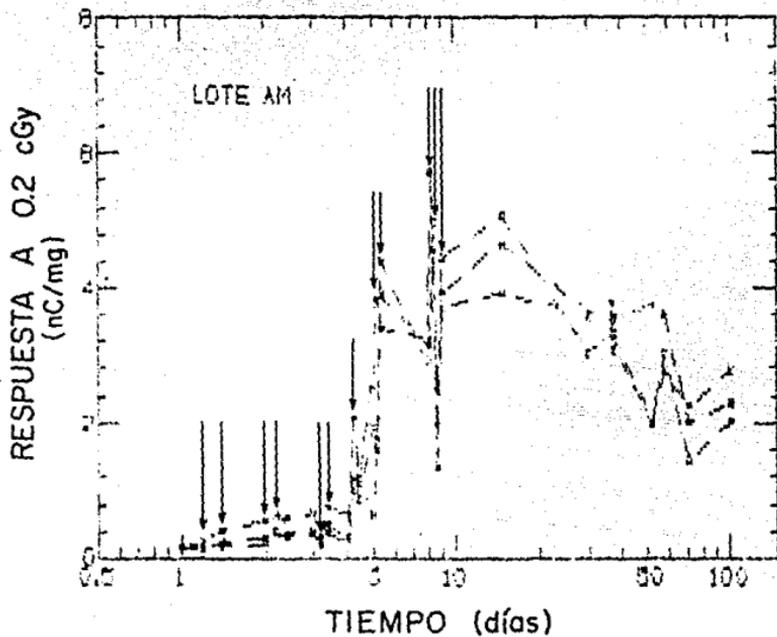


Fig. II-6

Sensibilidad del lote AM, durante el tratamiento térmico (H) a que se sometió. Las flechas indican los hornados. Cada curva corresponde a un cristal diferente.

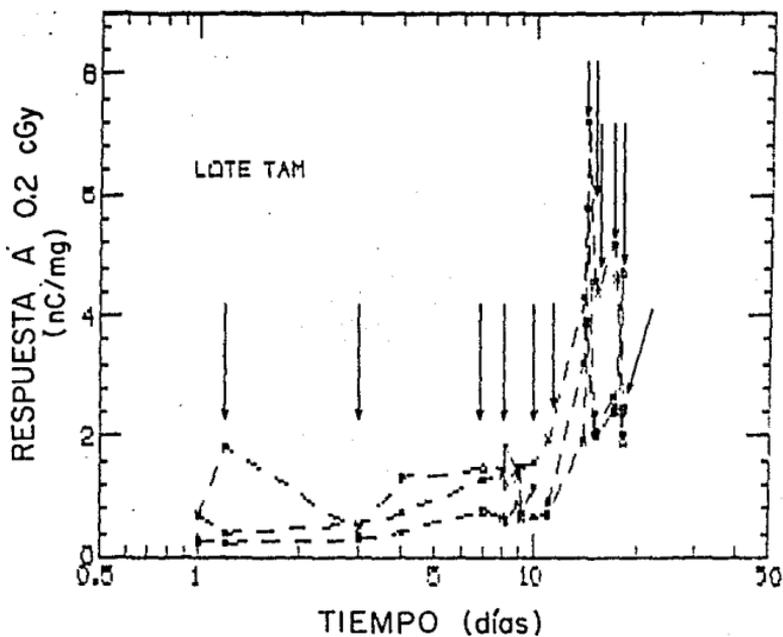


Fig. II-7

Sensibilidad del lote TAM, durante el tratamiento térmico (H) a que se sometió. Las flechas indican los hornados. Cada curva corresponde a un cristal diferente.

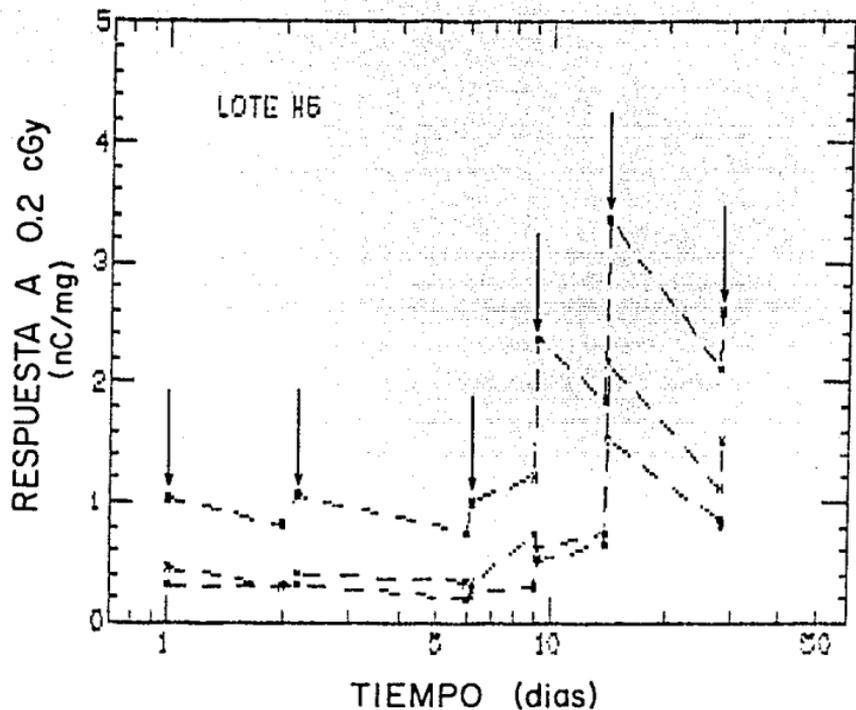


Fig. II-8

Sensibilidad del lote H5, durante el tratamiento térmico (5) a que se sometió. Las flechas indican los hornados. Cada curva corresponde a un cristal diferente.

tracción de Eu y el tipo de TT aplicado.

La tabla II.4 contiene la respuesta de cada una de las muestras que componen un lote irradiadas, 3 meses después de concluidos los TT, a 0.2 cGy. (Hay 3 casos en que se tomó el promedio de las tres muestras.). También se incluye la sensibilidad promedio de cada lote respecto de la del LiF.

Si se toma como referencia la sensibilidad del LiF comercial (TLD-100), se observa que aquellos lotes que corresponden a la muestra cuya concentración de Eu es de 0.1 % presentan una sensibilidad promedio entre 4 y 10 veces mayor que la del LiF, mientras que la de 0.01 % es cerca de 10 veces menor que la del LiF, y la de 1.0 % de Eu es aproximadamente 5 veces menor. Así pues, la concentración óptima de Eu en KBr (para propósitos de dosimetría TL) entre los tres casos estudiados es el 0.1 %.

En el lote de 0.1 % de concentración de europio se probaron los diferentes TT llegando a la conclusión de que el más apropiado, tanto en términos de ganancia en la sensibilidad como de estabilidad en la respuesta fue el M. Puede observarse en la tabla II.4 que los lotes que muestran la máxima sensibilidad respecto del LiF son AM Y TAM. Ambos lotes provienen del mismo cristal y recibieron el mismo TT. Una vez que se encontró que AM tenía concentración de Eu y TT óptimos, se reprodujo el TT en una nueva muestra del mismo lote, con el objeto de

TABLA II.4

RESPUESTA DE LOS DIFERENTES LOTES DE KBr:Eu A UNA DOSIS DE 0.2 cGy

Lote	Concentración nominal de europio (%)	Respuesta a 0.2 cGy (nC/mg)	Sensibilidad del KBr:Eu respecto del LiF
AM	0.1	2.0, 3.7, 3.3	9.6
BM	0.01	0.027 (± 0.005)	0.09
EM	1.0	0.062 (∓ 0.021)	0.2
TAM	0.1	2.9, 4.2, 2.8	10.4
H5	0.1	1.2, 2.3, 4.2	8.1
H6	0.1	1.4, 1.8, 2.1	5.6
H65	0.1	1.0, 1.2, 1.9	4.4
LiF	---	0.314 (∓ 0.018)	1.00

Investigar si los resultados eran reproducibles. Esto es, ¿es posible volver a obtener un cristal con las mismas características y propiedades que AM si tomamos una muestra del mismo cristal original y lo sometemos al mismo IT?. El nombre de ese nuevo lote fué TAM, que significa "testigo de AM" y los resultados muestran (figs.II-2 y II-3, ta-

bla II.4) que el tratamiento si es reproducible y que se ha encontrado un método que mejora sensiblemente las características dosimétricas TL del KBr:Eu.

Cabe mencionar que se hizo un intento de sustituir estos tratamientos térmicos complejos (n horneados de una hora, irradiación y lectura) por un tratamiento simple de sólo un horneado de n horas, encontrándose que en lugar de aumentar la sensibilidad, ésta disminuía notoriamente, por lo que se descartó esta posibilidad.

II.5 ESTADO DE AGREGACION

Con el objeto de encontrar una posible relación entre los tratamientos térmicos (que son los responsables de los cambios en las propiedades dosimétricas TL del KBr:Eu) y el estado de agregación del Eu en la red cristalina del KBr, se determinó éste antes y después de los TT para KBr:Eu (lote AM), con concentración de 0.1 % de Eu. Para esto se utilizó la relación entre la longitud de onda del máximo del pico del espectro de emisión y el estado de agregación (Mu,1983), encontrándose que, dentro de las incertezas experimentales, no se detecta ningún cambio. La tabla II.5 muestra el valor de la longitud de onda de máxima emisión para 4 muestras de KBr:Eu (0.1 %), medidas antes y después de que las muestras fueran sometidas a los TT.

TABLA II.5

VALORES DE λ DE MAXIMA EMISION PARA ESPECTROS DEL KBr:Eu (0.1 %),
TOMADOS ANTES Y DESPUES DE QUE LAS MUESTRAS FUERAN SOMETIDAS A
TRATAMIENTOS TERMICOS.

Muestra	λ (antes de TT)	λ (después de TT)
1	422 \pm 2 nm	419 \pm 2 nm
2	418 \pm 2 "	420 \pm 2 "
3	419 \pm 2 "	419 \pm 2 "
4	419 \pm 2 "	420 \pm 2 "

II.6 DESVANECIMIENTO

Haciendo referencia nuevamente a las curvas de brillo, ha sido ya estudiado (ec. I-1) que la probabilidad de que los picos decaigan (emitan luz espontáneamente después de ser irradiados) disminuye para los picos que existen a temperaturas altas respecto de la ambiental. Por ejemplo, en el TLD-100 (LiF), la vida media (es decir, el tiempo

necesario para que la mitad de los e^- en la trampa sean liberados a temperatura ambiente) del pico que ocurre a 45°C es de 5 min, mientras que la del pico que se encuentra a 195°C es de 80 años (Ca,1968). Resulta muy conveniente trabajar -en términos de dosimetría- con picos que existen a temperaturas mayores que los 100°C , sin embargo, se observa que el pico de mayor intensidad en el KBr:Eu se encuentra por debajo de los 100°C , aunque muy cerca, para los diferentes lotes estudiados. Así pues, se hace necesario estudiar la forma de decaimiento (o desvanecimiento) del pico mencionado para elegir un tiempo posterior a la irradiación, al que conviene hacer la lectura de la respuesta.

El procedimiento experimental para obtener la forma de decaimiento del pico consiste en irradiar las muestras a una dosis fija (0.2 cGy) y leer su respuesta inmediatamente después de irradiadas; irradiar de nuevo y leer 5 o 10 min después de irradiadas, y seguir este procedimiento hasta los tiempos que se juzguen convenientes. Se grafica la intensidad de la señal contra el tiempo transcurrido entre la irradiación y la lectura para una dosis fija (ver fig. II-9) y se elige un tiempo entre irradiación y lectura que será el que se utilizará siempre después de cada exposición del cristal a la radiación. Esta práctica permite tener confianza en lo que se está comparando y tener reproducibilidad en las respuestas de los cristales a eventos iguales.

Como se observa en la fig. (II-9), la curva de desvanecimiento del

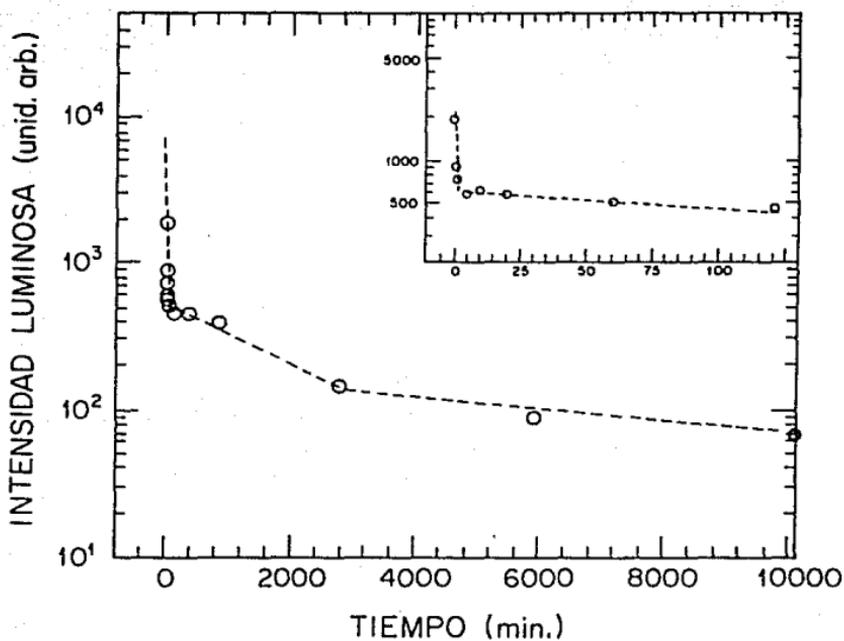


Fig. 11-9

Curva de desvanecimiento del KBr:Eu sometido a tratamientos térmicos.

Las unidades son nC, y la respuesta no está normalizada por la masa porque se compara siempre la misma muestra.

KBr:Eu presenta tres pendientes distintas. La primera de ellas corresponde a la emisión espontánea del pico P_0 e indica un decaimiento muy rápido de la intensidad (5 min para reducirla en un factor de 3, respecto de su valor inicial). Tanto la segunda como la tercera pendientes corresponden a la suma de las intensidades de los picos P_1 y P_2 . La segunda pendiente indica que se requiere un tiempo aproximado de 50 horas para reducir la intensidad de los picos en un nuevo factor de 4 (esto es, partiendo de que ya se redujo antes un factor de 3 en los primeros 5 min), y después, la rapidez de decaimiento se hace menor (tercera pendiente), necesitándose 7 días más para reducir en un nuevo factor de 3 la intensidad de la respuesta.

Aunque en la Fig. (II-9) se observa una disminución abrupta de la intensidad luminosa durante las primeras horas transcurridas entre la irradiación y la lectura, esto se debe parcialmente a que la escala de tiempo es muy amplia y no permite resolver en detalle la evolución de la intensidad luminosa para intervalos de tiempo cortos. Con la intención de examinar con un poco más de detenimiento el primer intervalo de la curva, se muestra una ampliación, contenida en el ángulo superior derecho de la Fig. (II-9) que indica, a partir de los mismos datos experimentales, la evolución de la intensidad luminosa del KBr:Eu con el tiempo, para las primeras horas posteriores a la irradiación. A partir de esta curva se determinó el tiempo entre irradiación y lectura que se utilizó a lo largo de todo el trabajo y

que fue de 20 ± 1 min. No debe perderse de vista que, el valor de la pendiente en ese punto de la curva indica que una variación de 1 min en el tiempo de lectura significa una diferencia hasta de un 4% respecto del valor medido a los 20 min.

11.7 CURVAS DOSIS-RESPUESTA

Una vez que se ha realizado el ejercicio del inciso anterior y se ha definido el tiempo entre irradiación y lectura que se va a utilizar, puede procederse a construir las curvas de dosis-respuesta. El procedimiento experimental consiste en irradiar las muestras a distintas dosis, esperar el tiempo entre irradiación y lectura, determinado en el inciso anterior, y leer la respuesta correspondiente. El límite inferior del intervalo de dosis estudiado estuvo dado por limitaciones de las fuentes radiactivas de que se dispone, y el superior por limitaciones del cristal mismo.

Durante el proceso de irradiación de los cristales a dosis diferentes para construir las curvas de dosis-respuesta, se llevo a cabo un ejercicio que consistió en irradiar la muestra en estudio a una dosis testigo (0.1 cGy), leerla y graficarla antes y después de cada una de las irradiaciones correspondientes a la curva de dosis-respuesta. La finalidad de este seguimiento fue poder detectar algún cambio en la sensibilidad del cristal que hubiera sido inducido por la radiación

recibida durante el estudio. Así, en caso de notar cambios drásticos en la respuesta del cristal después de la irradiación a cierta dosis, se puede discriminar entre un cambio en el comportamiento del cristal frente a esa dosis de radiación (y que no afecta su respuesta a la dosis testigo) o un cambio en la estructura interna del mismo (que afecta ambas respuestas). La serie de figuras (II-10) a (II-14) muestra las curvas de dosis-respuesta de los 5 lotes que corresponden al cristal cuya concentración nominal de Eu es de 0.1% . La respuesta mostrada es la integral de la señal TL debajo de los picos P₁ y P₂. La tabla II.6 contiene la lista de los intervalos de dosis (cGy) en que los distintos lotes de KBr:Eu presentan una respuesta lineal con la dosis, tal como se aprecia en las figs. (II-10) a (II-14). Para dosis mayores el comportamiento de los cristales deja de ser estable; hay casos de aparente supralinealidad y otros de decaimiento de la señal con la dosis. Esto se discutirá en el Cap. III.

Para mayor comodidad del lector, la tabla II.7 es un resumen de la información contenida en el capítulo II, integrando todas las características de los cristales estudiados. La discusión detallada de los resultados se encuentra en el capítulo siguiente.

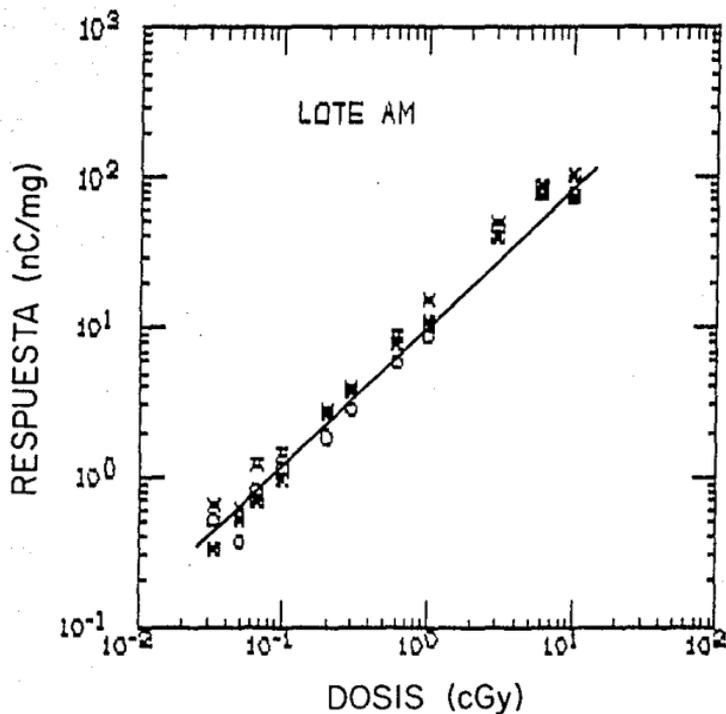


Fig. II-10

Curva de dosis-respuesta para los tres cristales del lote AM. Se muestra la medida para cada cristal. La recta es un ajuste de regresión lineal entre el promedio de los tres cristales y la dosis.

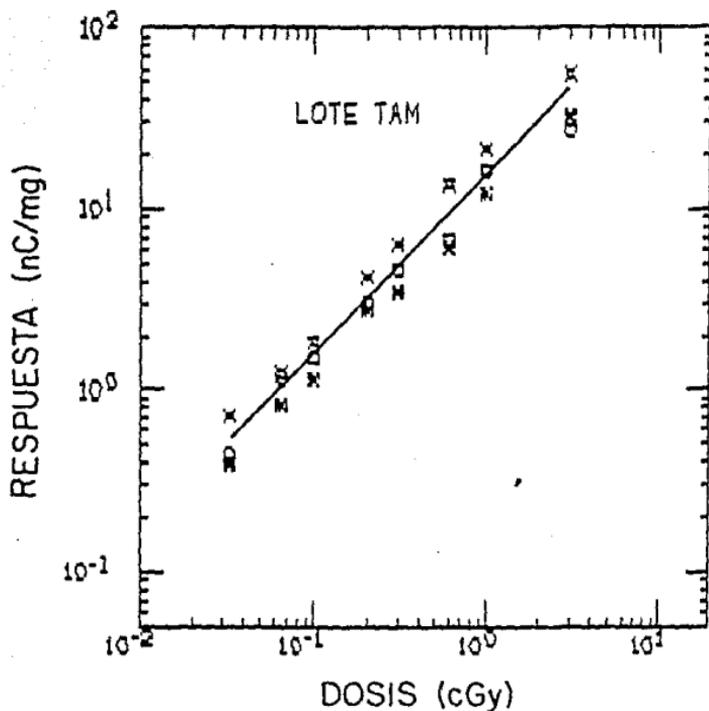


Fig. 11-11

Curva de dosis-respuesta para los tres cristales del lote TAM. Se muestra la medida para cada cristal. La recta es un ajuste de regresión lineal entre el promedio de los tres cristales y la dosis.

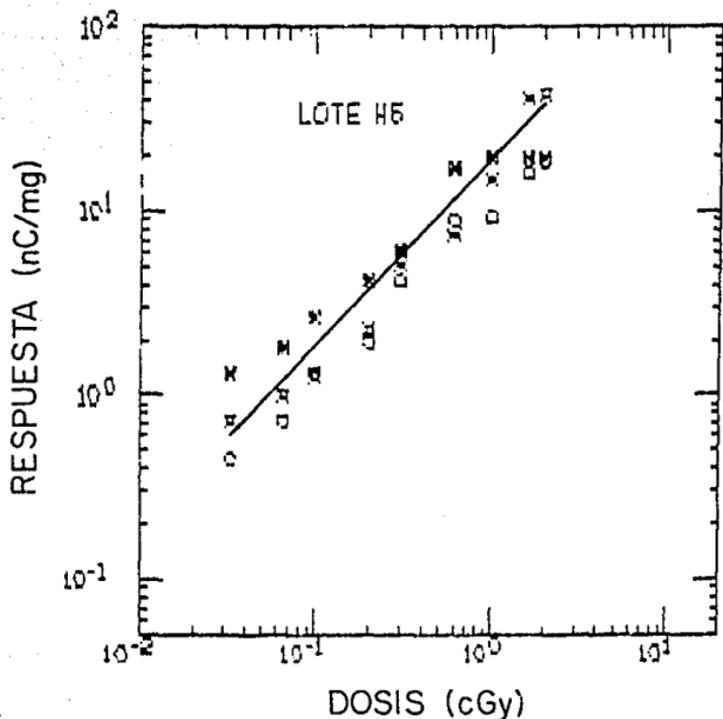
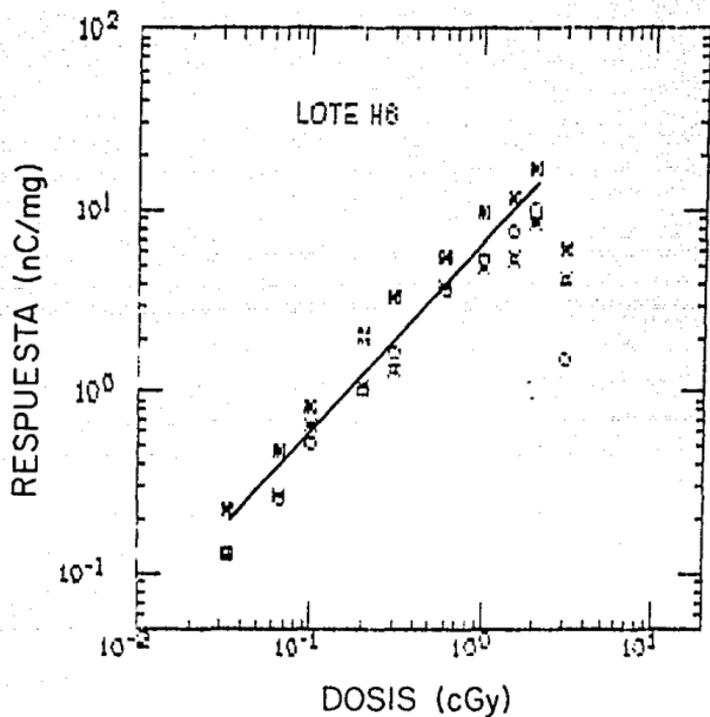


Fig. 11-12

Curva de dosis-respuesta para los tres cristales del lote H5. Se muestra la medida para cada cristal. La recta es un ajuste de regresión lineal entre el promedio de los tres cristales y la dosis.



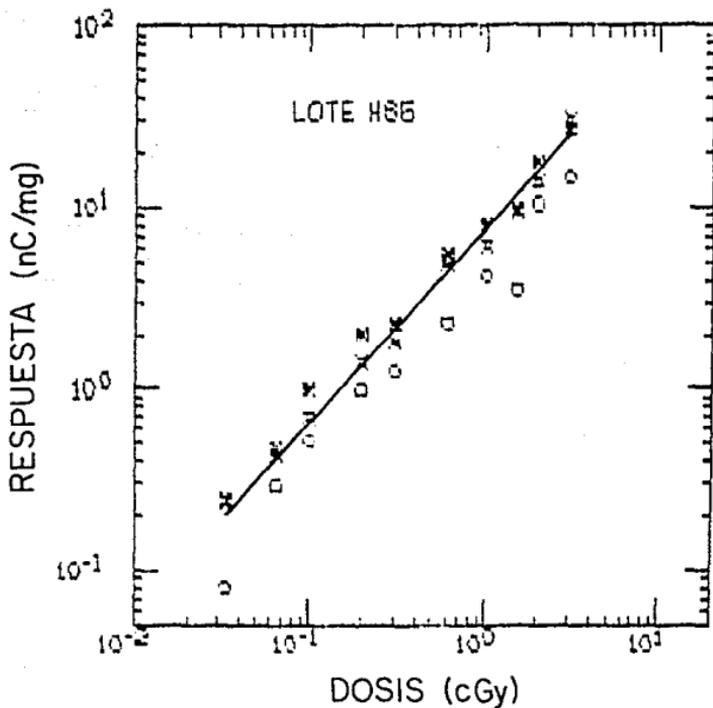


Fig. II-14

Curva de dosis-respuesta para los tres cristales del lote H65. Se muestra la medida para cada cristal. La recta es un ajuste de regresión lineal entre el promedio de los tres cristales y la dosis.

TABLA II.6

INTERVALO DE DOSIS EN QUE LA RESPUESTA DEL KBr:Eu (0.1% de Eu) ES
LINEAL CON LA DOSIS ABSORBIDA.

Lote	Intervalo de dosis (cGy)
AM	2×10^{-2} a 1×10^1
TAM	3×10^{-2} a 3
H5	3×10^{-2} a 2
H6	3×10^{-2} a 2
H6S	3×10^{-2} a 1

TABLA II.7

CARACTERISTICAS GENERALES DE LOS CRISTALES DE KBr:Eu

Muestra	Concentr. nominal Eu (%)	TT	Temperatura picos ($^{\circ}$ C)		Respuesta a 0.2 cGy (nC/mg)	IVD (%)	Intervalo linealidad (cGy)
			P ₁	P ₂			
AM	0.1	M	97	203	3.0 \pm 10%*	(\pm 30%)**	2x10 ⁻² -10.
EM	0.01	M	76	152	0.027	(\pm 19%)	----
EM	1.0	M	88	129	0.062	(\pm 34%)	----
TAM	0.1	M	86	154	3.3 \pm 18%	(\pm 24%)	3x10 ⁻² -3
HS	0.1	S	86	169	2.6 \pm 15%	(\pm 58%)	3x10 ⁻² -2
H6	0.1	6	82	180	1.8 \pm 16%	(\pm 19%)	3x10 ⁻² -2
H6S	0.1	6S	87	158	1.4 \pm 15%	(\pm 34%)	3x10 ⁻² -1
LIF	---	T			0.314 \pm 6%		10 ⁻² -10 ³

* desviación estándar para la respuesta de 10 irradiaciones de una misma muestra a la misma dosis.

** Intervalo (relativo al promedio) de valores en la respuesta de tres muestras de un mismo lote a una misma dosis.

CAPITULO III

CARACTERISTICAS DOSIMETRICAS DE LOS CRISTALES TRATADOS TERMICAMENTE

Una vez que se han obtenido los resultados experimentales del estudio de las propiedades termoluminiscentes de los cristales de KBr:Eu tratados térmicamente, se dedicará este capítulo a analizar y comentar tales resultados, extrayendo de esa información las características dosimétricas de los cristales estudiados.

III.1 ESTABILIDAD

Antes de decidir si los cristales estudiados se comportan de manera estable, se aclarará qué significado tiene esta palabra en el contexto en que se está trabajando. Esto es, se considerará que los cristales tienen un comportamiento estable -desde el punto de vista de la

dosimetría termoluminiscente- si:

a) la curva de brillo es reproducible, dentro de ciertos límites, como se indica en la tabla II.3, y

b) La curva de dosis-respuesta es reproducible (para un tiempo entre irradiación y lectura prefijado), dentro de ciertos límites.

Aquí, por supuesto, se está considerando que el cristal no ha sido sometido a ninguna influencia externa diferente de la radiación, que pudiera afectar su respuesta.

Así pues, la razón primordial por la que se llevaron a cabo los tratamientos térmicos (TT) en los cristales de KBr:Eu fue para corregir la falta de reproducibilidad observada, tanto en la posición de los picos de temperatura en la curva de brillo, como en el valor de la respuesta, para un cristal irradiado varias veces a la misma dosis, y leído en condiciones idénticas. Los resultados obtenidos como consecuencia de la aplicación de los TT a los cristales se muestran en la columna 4 (temperatura de los picos posterior al TT) de la tabla II.7. Estos valores se obtuvieron -para todos los lotes menos EM y LiF- promediando 30 medidas de las posiciones de los picos de temperatura en curvas de brillo que se graficaron con cristales que ya habían concluido su TT. En la tabla resumen no aparece el pico de 41°C , inútil para hacer dosimetría, ni el de 239°C que sólo se observó en una muestra (ver tabla II.3). En todos los lotes estudiados, aparece el pico P₁ alrededor de 85°C y el P₂, alrededor de 162°C . Hay que hacer

ESTA TESTS NO DEBE
SALIR DE LA ESCUELA.

notar que AM y TAM difieren en la posición de sus picos de temperatura (significativamente para P2), estando los de AM a mayor temperatura que los de TAM.

La columna 5 de la tabla II.7 muestra la respuesta de las muestras a irradiaciones con 0.2 cGy, promediada sobre 10 medidas idénticas. Se observan desviaciones respecto del promedio, entre el 10% y el 18%, exceptuando el caso del LiF comercial, cuya desviación es del 5.7%. Los lotes EM y EM presentan una reproducibilidad muy pobre (EM tiene una desviación de 19% respecto del promedio y EM de 34%) por lo que se eliminaron de estudios posteriores. Esta característica parece depender de la concentración de Eu en el KBr y no del tipo de TT aplicado. El lote que exhibe mayor estabilidad es AM, con una desviación del 10% respecto del promedio individual, mientras que la de los lotes restantes (TAM, H5, H6 y H65) oscila entre el 15% y el 18%.

III.2 LINEALIDAD

Como se mencionó antes, es deseable trabajar con dosímetros cuya respuesta presenta una dependencia lineal con la dosis absorbida. En el presente estudio se construyeron curvas de dosis-respuesta (inciso II.7) para aquellos lotes que mostraron una sensibilidad mayor que la del LiF comercial, es decir aquéllos con concentración de 0.1% de europio.

A partir de las curvas dosis-respuesta (figs. II-10 a II-14) se obtuvieron los intervalos de linealidad (columna 7 de la tabla II.7). Debido a que se disponía de fuentes de radiación cuya tasa de dosis mínima era de 2.22×10^{-3} cGy/s, no fue posible extender el estudio a dosis más bajas que 3×10^{-2} cGy, por lo que se desconoce el límite inferior de linealidad de los cristales. Sin embargo existe la intención de completar este renglón ya que habría aplicaciones prometedoras para el KBr:Eu como dosímetro (dosimetría ambiental y lectura diaria de la dosis dispersada en las habitaciones utilizadas para radiografía de diagnóstico, que permitiría un control fino de las dosis recibidas por el personal ocupacionalmente expuesto), en el caso de poder extender el intervalo de linealidad a dosis más bajas.

El límite superior, en cambio es una característica que pudo ser estudiada. Así, puede observarse en la serie de figs. II-10 a II-14 y en la tabla II.6 que dicho límite varía para los distintos lotes, lo que asociamos con el tratamiento térmico, ya que se trata de muestras del mismo cristal original. En la sección III.3 se hablará más extensamente del significado que pueden tener los distintos comportamientos de los diferentes lotes de cristales en el límite superior.

De una manera general, englobando todos los lotes, puede considerarse la utilización de estos cristales como dosímetros termoluminiscentes confiablemente, en intervalos de dosis de 0.03 a 1 cGy, donde su respuesta a la dosis absorbida es lineal (dentro de un porcentaje

de desviación estadística).

Una característica muy particular del KBr proviene del hecho de que el potasio natural, está constituido por tres isótopos, uno de los cuales, el ^{40}K , es radiactivo. Esto significa que el cristal de KBr:Eu sufrirá constantemente autoirradiación, que debe ser evaluada para estimar la contribución a la dosis total en el cristal debida a la emisión del ^{40}K , y restarla de la dosis suministrada al cristal por fuentes externas.

La estimación de la contribución del ^{40}K se llevó a cabo considerando que la proporción de dicho isótopo a la masa total del K natural es de 0.0117% , que emite rayos β con una energía máxima de 1.36 MeV y radiación γ cuya energía es de 1.46 MeV, y que por cada 100 desintegraciones β^- ocurren 13 desintegraciones γ .

Para un volumen y una geometría típicos en una muestra (1x1x5mm), y para la energía promedio resultado del decaimiento β^- , se calculó el alcance máximo en KBr de las partículas β^- (0.12 mm) y se estimó la energía que éstas depositan en el volumen de interés, de donde se dedujo la tasa de dosis absorbida por el cristal debida a la emisión β^- del ^{40}K . La contribución por emisión γ resultó despreciable debido al espesor tan pequeño de la muestra y a la alta energía de la radiación γ .

El valor obtenido, dentro de las aproximaciones señaladas, es $D=1.1 \times 10^{-5}$ cGy/h. Este puede ser importante si se desea leer dosis muy

bajas con el cristal (del orden de dosis ambientales) y si se deja transcurrir mucho tiempo entre el horneado de "borrado" de la señal y una nueva lectura. La recomendación para evitar esta contribución sería hornear el cristal (en el lector TLD) inmediatamente antes de someterlo al campo de radiación externa que se desea medir para borrar la contribución del ^{40}K .

III.3. LIMITE SUPERIOR UTIL DE DOSIS

Las figuras III-1 y III-2 muestran la curva dosis-respuesta para muestras individuales de cristales de los lotes AM y H6, respectivamente. Además de la curva de respuesta, se muestra la respuesta del mismo cristal a una dosis testigo de 0.1 cGy.

Cada una de estas irradiaciones a 0.1 cGy se realizó inmediatamente después de una irradiación a las dosis (D) empleadas para construir la curva de respuesta. En las figuras III-1 y III-2 se ha graficado con cruces la respuesta testigo versus el valor correspondiente de dosis D.

La fig. III-1 presenta la curva de dosis-respuesta de la muestra 1 del lote AM, en el intervalo de dosis de 0.03 a 30 cGy. Se observa que la pendiente crece abruptamente a partir de 20 cGy. La respuesta del cristal a la dosis testigo a partir de 20 cGy ya es alta comparada con el promedio de los valores para dosis inferiores. El promedio mencio-

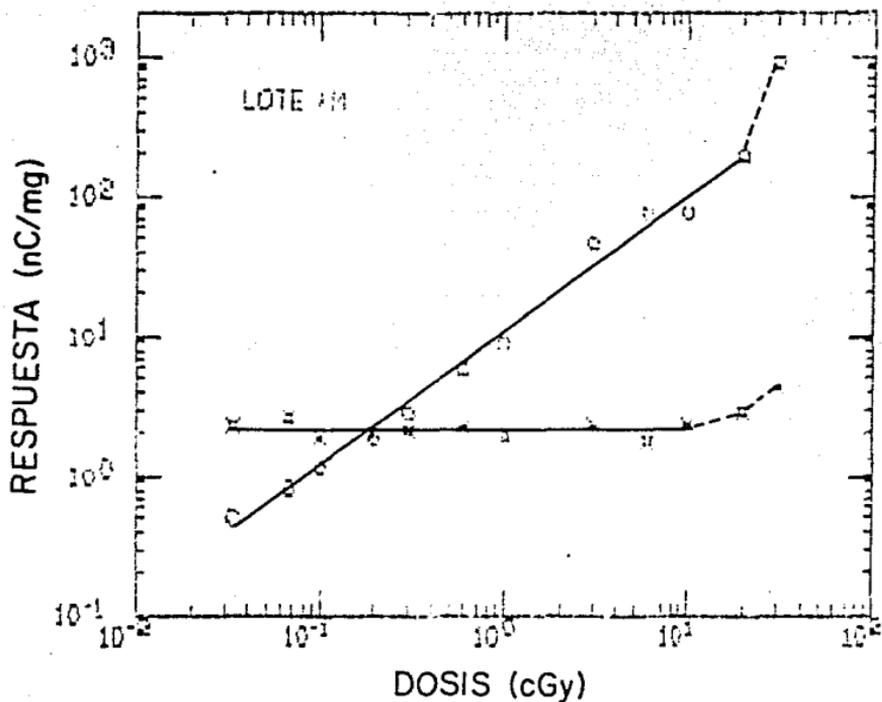


Fig. III-1

Curva dosis-respuesta (círculos) para una muestra del lote AM. Las curvas sirven sólo de guía visual. Las cruces son la respuesta del mismo cristal a 0.1 cGy.

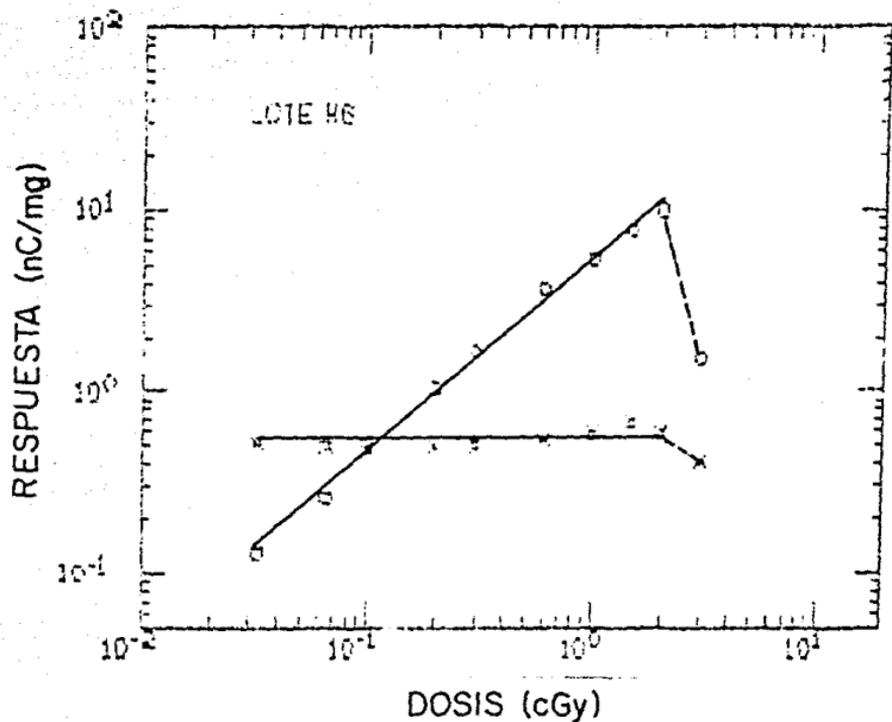


Fig. III-2

Curva dosis-respuesta (círculos) para una muestra del lote H6. Las curvas sirven sólo de guía visual. Las cruces son la respuesta del mismo cristal a 0.1 cGy.

nado es de 2.1 ± 0.2 nC/mg, mientras que la respuesta después de la irradiación de 20 cGy es de 2.9 nC/mg y después de 30 cGy sube hasta 4.3 nC/mg. Este resultado se puede interpretar como evidencia de que el cristal ha sufrido un cambio interno, producido por una cierta cantidad de radiación (en este caso 20 cGy), que ha provocado un cambio en su respuesta a la radiación.

La fig. III-2 representa la curva de dosis-respuesta de la muestra 1 del lote H6, para el intervalo de dosis de 0.03 cGy a 3 cGy. Se nota que la pendiente de esta curva decae ligeramente para las dosis entre 0.6 y 2.0 cGy. En este caso, el valor de la dosis testigo permanece constante (dentro del valor promedio), o incluso tiende a aumentar. A los 3 cGy se tiene una caída drástica de la pendiente respuesta/dosis e inmediatamente se observa una correspondiente disminución del valor de la respuesta testigo. Este comportamiento se puede interpretar como el anterior, sólo que en este caso el cambio en el cristal lo lleva a disminuir su respuesta a la radiación.

Considero necesario enfatizar que este estudio, usando una irradiación testigo, permite identificar el instante en que el cristal sufre un cambio en sus propiedades, y por lo tanto, la calibración previa (i.e. la medida de su sensibilidad) deja de ser válida. El cristal puede ser utilizado confiablemente sólo hasta el valor de dosis en que se observa el cambio, y éste sería el límite superior de dosis útil. Este último es una característica tanto del cristal como del lote, y

se observa en las figs. III-1 y III-2 que es distinto para cada uno de los tratamientos térmicos utilizados.

III.4 CONCENTRACION OPTIMA DE EUROPIO

En la tabla II.7 (columnas 2 y 5), se observa que los cristales de KBr:Eu cuya concentración nominal fue de 0.1%, tienen una sensibilidad que oscila entre 1 y 2 órdenes de magnitud mayor que aquéllos de concentración nominal de 0.01% y 1.0%. Por lo tanto puede decirse que, para propósitos de dosimetría termoluminiscente, la concentración óptima de Eu en KBr, de los tres casos estudiados, es de 0.1%.

La concentración nominal está dada por la cantidad de Eu que se agrega al cristal en el momento de crecerlo. Sin embargo, debido a la técnica utilizada para el crecimiento de los cristales, la distribución del Eu en el KBr no es homogénea y, en consecuencia, la concentración para pequeñas muestras tomadas de distintas zonas del monocristal no es necesariamente la misma.

Para completar el estudio sobre influencia de la concentración del europio en el comportamiento dosimétrico termoluminiscente de los cristales de KBr:Eu, se realizó (Ga, 1990) una medida de la concentración de Eu en muestras de cada lote, utilizando la técnica de análisis por absorción atómica.

La tabla III.1 muestra los valores obtenidos del análisis por ab-

sorción atómica (Ga,1990). El acuerdo con los valores nominales es cualitativamente bueno excepto en un par de casos, en que las diferencias son difíciles de explicar. Tal como se ha señalado anteriormente, las propiedades termoluminiscentes estudiadas en esta tesis resultan estar correlacionadas con los valores nominales de la concentración.

III.5 DESVANECIMIENTO

Como se mencionó en el capítulo anterior (sección II.6), la curva de desvanecimiento del KBr:Eu muestra tres etapas de diferente régimen de decaimiento. La primera corresponde al pico P_0 , que es muy intenso inmediatamente después de la irradiación y constituye la contribución más importante a la intensidad luminosa en ese momento. Este pico se reduce en un factor de 3 en unos cuantos minutos y deja de ser relevante para hacer dosimetría. La segunda pendiente tiene componentes tanto del pico P_1 como del P_2 , y corresponde a una etapa de relativa estabilidad (en los siguientes 2 días se reduce un factor de 4 que se añade a los anteriores). La tercera pendiente es la menos pronunciada (en los siguientes 7 días se reduce un factor de 3). Las lecturas de la respuesta del KBr:Eu a la radiación se hicieron siempre 20 minutos después de haber sido irradiado, como se mencionó en el capítulo anterior.

TABLA III.1

COMPARACION ENTRE VALORES DE CONCENTRACION NOMINAL DE Eu EN KBr Y VALORES DE CONCENTRACION OBTENIDOS POR ABSORCION ATOMICA.

Lote	Concentración(%) (absorción atómica)	Concentración Nominal (%)
AM	0.001	0.1
TAM	0.013	0.1
H5	0.012	0.1
H6	0.0002*	0.1
H65	0.013	0.1
EM	0.037	1.0
BM	0.002	0.01

* valor sujeto a comprobación posterior

III.6 FACTORES AMBIENTALES

Como se mencionó en el capítulo I (sección I.3.4), la respuesta de los dosímetros termoluminiscentes puede ser afectada por factores ambientales, tales como temperatura, humedad, luz, etc. No se llevó a

cabo en el presente trabajo el estudio sistemático de tales dependencias. Las medidas fueron realizadas a temperatura ambiente (18-26°C) y con los valores típicos de humedad del Distrito Federal (35-77% h.r.). Nunca se observó ningún efecto que pudiera correlacionarse con variaciones en estas magnitudes.

Respecto de la luz, el KBr:Eu es sensible a la misma en la región de longitudes de onda del ultravioleta, y esta característica se utiliza para estudiar los espectros de emisión y absorción. Por lo tanto, no deben exponerse estos cristales a la luz ambiental para evitar contribuciones no deseadas en la respuesta del dosímetro a la radiación. Otros dosímetros termoluminiscentes, como el LiF, son sensibles a luz de otras longitudes de onda, además de la UV, por lo que no se descartaría la posibilidad de un comportamiento semejante en el caso del KBr:Eu. Todo el trabajo descrito en esta tesis fue realizado en un laboratorio cuya fuente de iluminación es filtrada para eliminar la componente ultravioleta (focos amarillos y ventanas con filtros UV).

CAPITULO IV

CONCLUSIONES

El objetivo original de este trabajo (Su,1991) fue estudiar las propiedades dosimétricas termoluminiscentes del KBr:Eu, y durante el desarrollo del mismo se encontraron cambios muy interesantes en las mencionadas propiedades como consecuencia* de los tratamientos térmicos a que fueron sometidos los cristales. Las principales conclusiones del estudio son:

- 1.- Los tratamientos térmicos complejos, a temperaturas entre 400 y 600 °C, mejoran sensiblemente las propiedades termoluminiscentes de los cristales de KBr:Eu. Entre otras mejoras,
 - a) estabilizan las curvas de brillo, tanto en la posición de los picos de emisión como en la intensidad;
 - b) estabilizan la respuesta (integral del brillo) a la radiación γ ;

*Patente solicitada a SECOFI, Dic. 1990.

c) uniformizan la respuesta de muestras distintas pero con la misma concentración nominal de Eu a la radiación γ , y aún las muestras sometidas a T1 ligeramente diferentes tienden a comportarse en la misma forma; y

d) aumenta hasta en dos órdenes de magnitud la sensibilidad del KBr:Eu a la radiación γ , respecto de aquella anterior a los tratamientos térmicos.

2.- Los cristales sometidos a los tratamientos térmicos antes descritos tienen un buen comportamiento dosimétrico, esto es:

a) su respuesta a la radiación γ es estable;

b) pueden utilizarse en un intervalo de dosis de 0.03 a 10 cGy, en el cual muestran una relación lineal entre la respuesta y la dosis absorbida. Este intervalo de dosis es útil para dosimetría personal; y

c) su sensibilidad es hasta un orden de magnitud mayor que la del LiF comercial (TLE-100).

3.- Se estudiaron tres concentraciones nominales de Eu en el KBr (0.01%, 0.1% y 1.0%) y se concluyó que la óptima para propósitos de dosimetría termoluminiscente es de 0.1%.

4.- Aunque el tratamiento térmico óptimo fue el llamado mixto (M), todos los T1 complejos aplicados a muestras cuya concentración nominal

de Eu es de 0.1% mejoraron sensiblemente las propiedades dosimétricas termoluminiscentes del KBr:Eu. Resulta sumamente interesante la reproducibilidad de los efectos de los TT en las propiedades dosimétricas del cristal.

Estudios independientes en que se buscó estudiar las propiedades de estos cristales de KBr:Eu como posibles detectores de centelleo para partículas α (Be,1991) muestran que los tratamientos térmicos no modifican la eficiencia luminosa del cristal.

Los resultados presentados en este trabajo de tesis sugieren de inmediato la búsqueda de una explicación a los mismos. ¿Por qué se detectan cambios tan grandes en la respuesta a la radiación del KBr:Eu tratado térmicamente si, por otra parte, las pruebas ópticas aplicadas a los mismos no indican que haya cambios en el estado de agregación como consecuencia de los tratamientos térmicos o de la radiación absorbida? Se ha sugerido (He,1990) la generación de cambios en la red del KBr, además de los producidos por el Eu, como consecuencia de las altas temperaturas a que se sometieron los cristales. Otras posibles explicaciones serían la incorporación de oxígeno a la red cristalina (facilitada por la alta temperatura) o la eliminación de impurezas, distintas del europio, por difusión. Evidentemente, una respuesta definitiva requerirá de estudios específicos.

Las posibilidades de extender este estudio son múltiples. Podemos mencionar algunas orientadas a la optimización de los cristales como dosímetros:

a) Estudiar la dependencia de la respuesta del KBr:Eu con la energía de la radiación y con el tipo de radiación (este trabajo se limitó al uso de radiación γ de ^{60}Co y, en algunos casos β^- de ^{90}Sr). Ya se mencionó el posible uso como dosímetro de radiación-X en el ambiente ocupacional hospitalario. Cabe mencionar aquí, que en una revisión bibliográfica reciente se encontró que científicos brasileños (Go, 1979), utilizan el KBr sinterizado con $\text{CaSO}_4:0.1\% \text{ Dy}$, para detección de neutrones térmicos. El mecanismo consiste en aprovechar la alta sección eficaz para la reacción nuclear de captura (n, γ) que se produce tanto en el ^{79}Br (que constituye el 50.5% del bromo que se encuentra en la naturaleza), como en el ^{81}Br , que comprende el 49.4% del natural. Así, la casi totalidad del bromo emite radiación γ (además de β) al ser irradiado con neutrones térmicos, y ésta incide en el $\text{CaSO}_4:0.1\% \text{ Dy}$. Este último es un detector termoluminiscente convencional, sensible a la radiación γ , por lo que mostrará una respuesta a la misma, que a su vez será una medida del número de neutrones térmicos que interaccionó con el KBr y que permite estimar el flujo, y de ahí la dosis.

b) Estudiar detalladamente la producción (en los tratamientos térmicos) del pico cercano a 200°C de la curva de brillo y su

respuesta a irradiaciones. Aunque éste es mucho menos intenso que el pico cercano a 100°C , tendría una vida media considerablemente mayor, y por lo tanto menor desvanecimiento. Quizá también permitiría ampliar el intervalo de uso a dosis más altas.

c) Ampliar el estudio de intervalo de linealidad a dosis más bajas, utilizando fuentes de radiación de tasas de dosis menores.

Los cristales de KBr:Eu (0.1%) sometidos a los TT descritos pueden utilizarse como dosímetros, aunque debe quedar claramente establecido que faltaría diseñar un proceso de preparación de los dosímetros que se ajustara a las normas de calidad exigidas internacionalmente, lo cual es un laborioso procedimiento que está fuera de los propósitos de este trabajo.

BIBLIOGRAFIA

-(At,1986). Attix F.H., *Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry*, John Wiley and Sons, Inc.

-(Be, 1963), Arthur Belser, *Concepts of Modern Physics*, Mc Graw-Hill Book Company, Inc.

-(Be,1991), E. Belmont Moreno, A. Menchaca-Rocha, M.E. Brandan, J. Hernández A., M. Gonin, K. Hagel, R. Wada and J.B. Natowitz "KBr(Eu) scintillator crystals as heavy ion detectors", Nucl. Instr. and Meth., Vol A300, pp 85-88; y comunicación personal.

-(Bu,1966). Burlin, T.E., "A General Theory of Cavity Ionization" British Journal of Radiology, Vol 399 pp 727.

-(Bu,1968), Burlin, T.E., "Cavity Chamber Theory", *Radiation Dosimetry*, Vol I (F.H. Attix and W.C. Roesch, eds.), Chapter 8, Academic Press, New York.

-(Bu,1991), Buenfil A.E. and Brandan M.E., "Dosimetric Properties of KBr(Eu) Thermoluminescent Crystals", Health Physics, enviado.

-(Ca,1968), Cameron J.R., Suntharalingam N. and Kenney G., *Thermoluminescent Dosimetry*, Wisconsin Press, 1968.

-(Ca,1988), Camacho Q.A., Muñoz H.G., Rublo O.J., García M.J., Murrieta S.H., Hernández A.J., "Dosimetric Properties of KCl:Eu", *Journal of Material Science Letters*, Vol 7, pp 437-440.

-(Che,1969), Chen R., "On the Calculation of Activation Energies and Frequency Factors from Glow Curves", *J. Appl. Phys.*, Vol. 40, pp 570.

-(De,1975), Dekker A.J, *Solid State Physics*, Mc Millan Press LTD.

-(Ga,1948), Garlick G.F.J. and Gibson A.F., *Proc. Phys. Soc. (London)*, A60, 574.

-(Ga,1990), Garza C. Comunicación personal.

-(Go,1979), Gordon, A.M.P.L.; Muccillo, R., "Thermal neutron detection by activation of dysprosium and potassium bromide activated calcium sulfate thermoluminescent phosphors", Report 1979. IEA-PUB 527, 7 pp.

-(Ha,1960), Halperin A. and Braner A.A., "Evaluation of Thermal Activation Energies from Glow Curves II", Phys Rev, Vol. 117 pp 408.

-(He,1979), Hernández A.J., Cory W.K. and Rubio O.J. "A Non Destructive Method for Determining the Eu^{2+} Concentration in the Alkali Chlorides", Japanese Journal of Applied Physics, Vol 18, No 3, pp 533-538.

-(He,1981), Hernández A.J., Murrieta S.H., Jaque F. and Rubio O.J., "Thermally stimulated depolarization of Eu^{2+} cation vacancy dipoles in the alkali halides single crystals", Sol. State Comm., Vol 39, pp 1061.

-(He,1990), Hernández A.J., Comunicación personal.

-(Hi,1956), Hine G.J. and Brownell G.L., *Radiation Dosimetry*, Academic Press Inc., New York.

-(Ho,1970), Holm N. W., Berry R.J., *Manual on Radiation Dosimetry*, Marcel Dekker Inc., New York.

-(Ho,1981), Horowitz Y.S., "The Theoretical and Microdosimetric Basis of Thermoluminescence and Applications to Dosimetry", Phys. Med. Biol., Vol. 26, No 4, pp 765-824.

-(Ho,1984), Horowitz Y.S., *Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry*, CRC Press Inc.

-ICRU (1980), Radiation Quantities and Units, Report 33, International Commission on Radiation Units and Measurements, 7910 Woodmont Ave., Bethesda. Md. 20814.

-(Mo,1938), Mott N.F. and Gurney R.W., *Trans. Faraday Soc.*35.

-(Mo,1940), Mott N.F. and Gurney R.W., *Electronic Processes in Ionic Crystals*, Oxford Univ. Press.

-(Mu,1983), Murrieta S.H., Hernández A.J. and Rubio O.J., "About the optical properties of the Eu-ion as an impurity in nonmetallic crystals", *Klinam*, Vol. 5, pp 75-121.

-(Ra.1945), Randall J.F. and Wilkins M.H.F., "Phosphorescence and electron traps I.- The Study of traps distributions", *Proc. R. Soc. A*, Vol. 184, pp 336-389.

-(Ru.1986), Rubio O.J., Hernandez A.J., Murrieta S.H., Ramos B.S., "A simple model for the influence of impurity aggregates on the F-centres production of alkali halides", *Physical Review B*, Vol. 34, No. 8, pp. 5820-5825.

-(Ru,1986a), Rubio O.J., "Procesos Luminiscentes en Sólidos", *Ciencia*, Vol. 37, pp. 169-184.

-(Sp,1964), Spinks J.W.T. and Woods R.J., *An Introduction to Radiation Chemistry*, John Wiley & Sons, Inc., New York.

-(Sp,1965), Spencer L.V., "Note on the Theory of Cavity Ionization Chambers", *Rad. Res.*, Vol. 25, pp. 352.

-(Sp, 1971), Spencer L.V., "Remarks on the Theory of Energy Deposition in Cavities", *Acta Radiol.*, Vol. 10, pp. 1.